

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関  
国際事務局



(43)国際公開日  
2005年9月15日 (15.09.2005)

PCT

(10)国際公開番号  
WO 2005/086247 A1

(51)国際特許分類<sup>7</sup>: H01L 41/083, F02M 51/00,  
51/06, H01L 41/187, 41/22, H02N 2/00 6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地  
Kyoto (JP).

(21)国際出願番号: PCT/JP2005/004097

(22)国際出願日: 2005年3月9日 (09.03.2005)

(25)国際出願の言語: 日本語

(26)国際公開の言語: 日本語

(30)優先権データ:

特願2004-065725 2004年3月9日 (09.03.2004) JP

特願2004-076098 2004年3月17日 (17.03.2004) JP

特願2004-158454 2004年5月27日 (27.05.2004) JP

特願2004-220727 2004年7月28日 (28.07.2004) JP

特願2004-344821 2004年11月29日 (29.11.2004) JP

(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 京セラ株式会社 (KYOCERA CORPORATION) [JP/JP]; 〒

(72)発明者; および

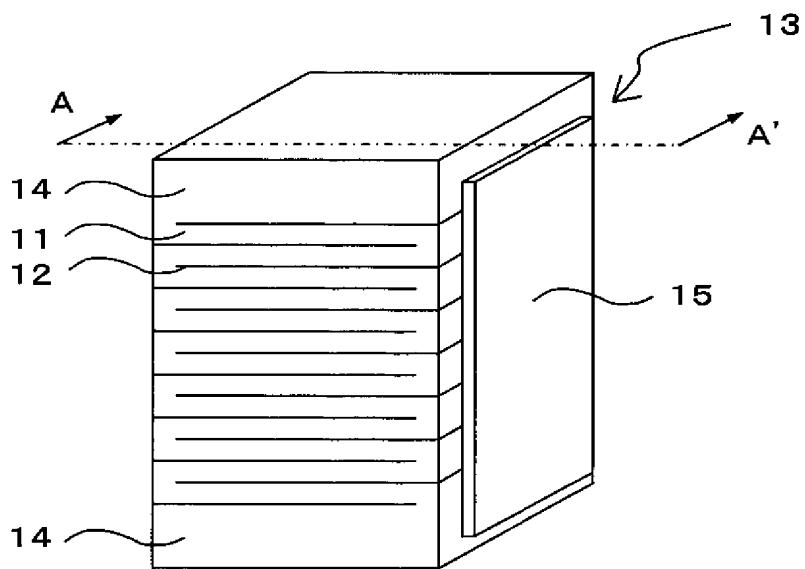
(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 近藤光央 (KONDO, Mitsuo) [JP/JP]; 〒8994396 鹿児島県国分市山下町1番1号京セラ株式会社鹿児島国分工場内 Kagoshima (JP). 寺園正喜 (TERAZONO, Masaki) [JP/JP]; 〒8994396 鹿児島県国分市山下町1番1号京セラ株式会社鹿児島国分工場内 Kagoshima (JP). 岡村健 (OKAMURA, Takeshi) [JP/JP]; 〒8994396 鹿児島県国分市山下町1番1号京セラ株式会社鹿児島国分工場内 Kagoshima (JP). 坂上勝嗣 (SAKAUE, Katsushi) [JP/JP]; 〒8994312 鹿児島県国分市山下町1番4号京セラ株式会社総合研究所内 Kagoshima (JP).

(74)代理人: 河宮治, 外 (KAWAMIYA, Osamu et al.); 〒5400001 大阪府大阪市中央区城見1丁目3番7号 IMPビル青山特許事務所 Osaka (JP).

/ 続葉有 /

(54)Title: MULTILAYER PIEZOELECTRIC ELEMENT AND ITS MANUFACTURING METHOD

(54)発明の名称: 積層型圧電素子とその製造方法



(57)Abstract: A multilayer piezoelectric element capable of increasing the displacement of a piezoelectric actuator at high voltage and under high pressure, free of variation of displacement even if the element is continuously driven for a long time at high voltage and under high pressure, and excellent in durability. The multilayer piezoelectric element comprises a multilayer body formed by alternating at least one piezoelectric body and inner electrodes composed of first and second inner electrodes, a first external electrode formed on a first side of the multilayer body and connected to the first inner electrode, and a second external electrode formed on a second side of the multilayer body and connected to the second inner electrode. The strength of adhesion between the piezoelectric body and the inner electrodes is less than the flexural strength of the piezoelectric body.

(57)要約: 高電圧、高圧力下で圧電アクチュエータの変位量を大きくでき、かつ、高電圧、高圧力下で長期間連続駆動させた場合でも変位量が変化することがない、耐久性に優れた積層型圧電素子を提供するために、少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、前記圧電体と前記内部電極との間の接合強度を前記圧電体の曲げ強度より弱くした。

WO 2005/086247 A1



- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,

BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

### 積層型圧電素子とその製造方法

#### 技術分野

[0001] 本発明は、積層型圧電素子(以下、単に「素子」ということもある)および噴射装置に関し、例えば、自動車エンジンの燃料噴射装置、インクジェット等の液体噴射装置、光学装置等の精密位置決め装置や振動防止装置等に搭載される駆動素子、ならびに燃焼圧センサ、ノックセンサ、加速度センサ、荷重センサ、超音波センサ、感圧センサ、ヨーレートセンサ等に搭載されるセンサ素子、ならびに圧電ジャイロ、圧電スイッチ、圧電トランス、圧電ブレーカー等に搭載される回路素子に用いられる積層型圧電素子に関するものである。

#### 背景技術

[0002] 従来より、圧電体と内部電極を交互に積層した積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータが知られている。積層型圧電アクチュエータには、同時焼成タイプと、1つの圧電体からなる圧電磁器と板状体の内部電極を交互に積層したスタッカタイプの2種類があるが、低電圧化、製造コスト低減の面、薄層化に対して有利であることと、耐久性に対して有利であることから、同時焼成タイプの積層型圧電アクチュエータが優位性を示しつつある。

[0003] 図24A、図24Bは、特許文献1に開示された従来の積層型圧電素子を示すもので、積層体103と、その対向する一対の側面に形成された外部電極105とから構成されている。積層体103は、圧電体101と内部電極102とが交互に積層されてなるが、内部電極102は圧電体101の正面全体には形成されず、いわゆる部分電極構造となっている。この部分電極構造の積層体は、内部電極102が一層おきに側面に露出するように左右互い違いに積層されている。このように、従来の同時焼成タイプの積層型圧電素子は、極性の異なる内部電極と外部電極が接触しないように部分電極構造の内部電極パターンを有していた。また、積層体の側面において、内部電極を1つおきに絶縁体で被覆して外部電極と絶縁したものもある。このように、いずれのタイプのものでも、積層体の側面に一層おきに内部電極を露出させておいて、積層体103

の対向する一対の側面に一層おきに露出した内部電極に接続されるように外部電極105が形成される。尚、積層体103の積層方向における両端面には不活性層104が積層されている。

[0004] また、従来の積層型圧電素子は、圧電体材料を含むセラミックグリーンシートに内部電極ペーストを印刷したものを複数積層して焼成することによって積層体103を作製し、積層体103の一対の側面に外部電極105を形成することにより作製される(例えば特許文献1参照)。尚、セラミックグリーンシートには内部電極ペーストが図24Bに示すような所定のパターンで印刷される。

[0005] このような同時焼成タイプの積層型圧電素子は、内部電極102と圧電体101を密着させるために、内部電極102の焼結温度と圧電体101の焼結温度を一致させることが求められ、その要求を満たすように、内部電極102や圧電体101の材料組成が検討されている。

通常、内部電極102として、銀とパラジウムの合金が用いられるが、圧電体101と内部電極102を同時焼成するために、その組成比は、通常、銀70重量%、パラジウム30重量%に設定される(例えば、特許文献2参照)。

[0006] また、パラジウムを含む銀—パラジウム合金含有の金属組成からなる内部電極102は、銀が素子表面を伝わって移動するという、いわゆるシルバーマイグレーション現象を抑制できる。すなわち、銀のみの組成では、対向する内部電極102間に電位差を与えた場合、その正極から負極へ電極中の銀が素子表面を伝わって移動するシルバーマイグレーション現象が生じる。この現象は、高温、高湿の雰囲気中で、発生が著しい。

[0007] また、内部電極に関しては、積層セラミックコンデンサの分野では、特許文献3において、内部電極の端部に空隙を設けることが提案されている。これは、誘電体層と内部電極層の界面で誘起された応力を緩和して、耐基板曲げ性等の信頼性に優れ、電気特性の安定性と高性能の品質を有する積層セラミックコンデンサを提供することを目的とするものである。

[0008] しかしながら、積層型圧電素子は通常の積層型電子部品(例えば積層型セラミックコンデンサ)とは異なり、通電に伴い電界が印加されると圧電体の磁器が大きく変形(

変位)する。また、駆動回数と圧電体磁器の変形回数が同じである。

この点を考慮して、頻繁に変位を伴う積層型圧電素子では、内部電極の耐久性を維持する目的で、内部電極を緻密構造にしていた。

[0009] 以上のように構成される積層型圧電素子において、リード線を外部電極105に半田により固定し、外部電極105間に所定の電圧を印加して駆動することにより、圧電アクチュエータとして使用することができる。

特許文献1:特開昭61-133715号公報

特許文献2:実開平1-130568号公報

特許文献3:特開2002-231558号公報

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0010] しかしながら、近年においては、小型の圧電アクチュエータ用の積層型圧電素子では、大きな圧力下において大きな変位量が求められているが、従来の積層型圧電素子は、圧電体101が内部電極102にクランプされた状態となり、圧電体101の変位量を大きくできないという問題があった。

また、緻密な内部電極では、近年求められているような大きな変位量を効率良く得ることが難しいという問題も生じていた。

さらに、積層型圧電素子を長時間駆動すると、素子温度が上昇し、この素子温度が放熱量を上回ると熱暴走現象が生じて破壊に至り、変位量が急激に劣化する問題があった。

[0011] またさらに、従来の積層型圧電素子を燃料噴射装置等の駆動素子に利用されるアクチュエータとして用いた場合には、所望の変位量が次第に変化して装置が誤作動する問題を生じていた。そのため、長期間連続運転における変位量の変化の抑制と耐久性向上が求められていた。

また、積層型圧電素子を高電界、高圧力下で長期間連続駆動させた場合、部分電極構造に起因して、特定の部分で変位が大きくなり、その部分が起点となって積層部分がはがれて破壊するという問題があった。

[0012] また、そのような特定の部位の変位による共振現象が発生して、うなり音が発生した

り、駆動周波数の整数倍の高調波信号が発生することがあるという問題があった。そのうなり音や高調波信号がノイズ成分となって、アクチュエータとして用いた場合、誤作動の原因となるという問題があった。

また、部分電極構造では、異なる極性の内部電極に挟まれた圧電体のみが変位を示し、内部電極に挟まれていない圧電体は変位を示さないために、高電界、高圧力下で長期間連続駆動させた場合、前記内部電極と前記絶縁領域の境界に応力が集中する。この応力に起因して、絶縁領域である圧電体にクラックが発生し、クラックを伝って、極性の異なる内部電極と外部電極間でショートして積層型圧電素子が破壊する問題があった。

[0013] 上述したようなクラックが発生した場合、圧電体の変位機能低下を引き起こすため、積層型圧電素子の駆動変位量が変化し、信頼性と耐久性が劣化する。

[0014] そこで、本発明は、高電圧、高圧力下で圧電アクチュエータの変位量を大きくでき、かつ、高電圧、高圧力下で長期間連続駆動させた場合でも変位量が変化することがない、耐久性に優れた積層型圧電素子および噴射装置を提供することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0015] 本発明に係る第1の積層型圧電素子は、圧電体と内部電極間の接合強度を、圧電体の曲げ強度との関係において、適切な範囲に設定することにより、圧電体が内部電極にクランプされた状態であってもクランプ力を小さくすることができることを見出して完成させたものである。

[0016] すなわち、本発明に係る第1の積層型圧電素子は、少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、前記圧電体と前記内部電極との間の接合強度を前記圧電体の曲げ強度より弱くしたことを特徴とする。

[0017] また、本発明に係る第2及び第3の積層型圧電素子は、これまでの考え方と異なり、敢えて内部電極に空隙を設けることにより、変位量が格段に向上し、また同時に耐久

性が向上することも見出し完成させたものである。

- [0018] すなわち、本発明に係る第2の積層型圧電素子は、少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、前記内部電極は空隙を含み、前記内部電極の断面において前記空隙の占める面積の割合が5～70%であることを特徴とする。
- [0019] また、本発明に係る第3の積層型圧電素子は、少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、前記積層体の積層方向に前記内部電極を貫通する空隙を設けたことを特徴とする。
- [0020] 本発明に係る第4の積層型圧電素子は、発明者が見出した次のような知見に基づき完成させたものである。  
すなわち、積層型圧電素子は、コンデンサ等の他の積層型電子部品とは異なり、駆動時に素子自体が連続的に寸法変化を起こす。そのため、高電界、高圧力下で長期間連続駆動させた場合、異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分のみが実効的な圧電変位をする。この際、異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分の形状が線対称形状であると、対称の中心線となる一直線上が最も変位が大きくなり、その一直線上にある素子側面が起点となり、積層部分がはがれて破壊する。
- [0021] さらに、変位がそろった一直線が存在することで、共振現象が発生して、うなり音が発生したり、駆動周波数の整数倍の高調波信号が発生してノイズ成分となって、アクチュエータとして用いた場合、誤作動の原因となる。  
また、このような変位の大きい部分が在ることにより、長期間繰り返し動作をさせた場合、変位量が変化して耐久性を劣化させていた。
- [0022] 以上の知見に基づいて完成された本発明に係る第4の積層型圧電素子は、少なく

とも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、前記第1の内部電極と前記第2の内部電極が対向する対向部分の形状は、非線対称形状であることを特徴とする。

[0023] 本発明に係る第5の積層型圧電素子は、発明者が見出した以下のような知見に基づいてなされたものである。

上述したように、極性の異なる外部電極と絶縁をとるために内部電極が形成されていない領域である絶縁領域に位置する圧電体は、異なる極性の内部電極間に挟まれていないため、積層型圧電素子を駆動させても前記圧電体は変位を示さない。

したがって、高電界、高圧力下で長期間連続駆動させた場合、異なる極性の内部電極に挟まれた圧電体のみが変位を示し、異なる極性の内部電極に挟まれていない圧電体は変位を示さないために、前記内部電極と前記絶縁領域の境界に応力が集中する。そのような応力が集中する境界では、圧電体にクラックが発生し易い。また、クラックが発生した場合、クラックを伝って、極性の異なる内部電極と外部電極間でショートすると素子が破壊する。

[0024] また、圧電体は絶縁体であることから、異なる極性の内部電極間で電流が流れることがないため、積層型圧電素子を駆動するための電圧は電極パターン端部に集中するいわゆるエッジ効果を発生する。そのため、異なる極性の内部電極に挟まれた圧電体のなかでも、電極パターン端部に挟まれた部位の変位が大きく変化しようとする。しかし、異なる極性の内部電極に挟まれていない圧電体は変位を示さないために、その境界により大きな応力が集中する。

[0025] かかる場合、内部電極と前記絶縁領域との境界が直線状であれば、境界の一部にクラックが発生した場合、その一点を起点にして境界に沿ってクラックが直線状に成長して積層型圧電体素子を破壊してしまう。また、内部電極と前記絶縁領域との境界に直線同士を付き合わせたような任意の角度の端部が内部電極パターンに形成されていると、直線同士を付き合わせたような任意の角度の端部に応力が集中して絶縁領域である圧電体にクラックが発生する。

[0026] このような知見に基づいて完成された本発明に係る第5の積層型圧電素子は、少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、前記第1の内部電極の前記第2の外部電極に対向する対向端部は円弧形状であり、前記第2の内部電極の前記第1の外部電極に対向する対向端部は円弧形状であることを特徴とする。

尚、前記第1の内部電極の円弧形状の対向端部と前記第2の外部電極の間は、前記第2の内部電極の円弧形状の対向端部と前記第1の外部電極の間は、上述した絶縁領域である。

### 発明の効果

[0027] 以上の本発明に係る第1の積層型圧電素子によれば、圧電体の強度よりも圧電体と内部電極との間の接合強度を弱くしたことで、内部電極が圧電体をクランプする力を小さくすることができることから、積層型圧電体素子の変位量を大きくすることができる。さらに、圧電体と内部電極との間の残留応力を小さくすることができるので、駆動中の変位量を一定とする耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。

また、本発明に係る第1の積層型圧電素子によれば、内部電極に硬度の高い硬い金属を用いた場合であっても、圧電体が内部電極にクランプされる力を比較的小さくでき、残留応力を小さくできる。したがって、連続して駆動した場合の変位量の変化を小さくでき、かつ残留応力が大きい積層型圧電素子を長時間駆動した場合に生じる素子温度の上昇を抑えることができる。これにより、この素子温度が放熱量を上回ったときに起こる熱暴走現象を防止でき、変位量の劣化を防止できる。

[0028] また、本発明に係る第2の積層型圧電素子は、前記内部電極の面積に対して5~70%を占める空隙を内部電極中に設けることで、圧電体が電界によって変形する時に内部電極によって拘束される力が弱まり、圧電体が比較的容易に変形できるために変位量が向上し、また内部電極に発生する応力も低減されることから耐久性にも優れたものとなる。

- [0029] また、本発明に係る第3の積層型圧電素子は、前記積層体の積層方向に前記内部電極を貫通する空隙を設けているので、圧電体が電界によって変形する時に内部電極によって拘束される力が弱まり、圧電体が比較的容易に変形できるために変位量が向上し、また内部電極に発生する応力も低減されることから耐久性にも優れたものとなる。
- [0030] 本発明に係る第4の積層型圧電素子によれば、異なる極性の内部電極同士が圧電体を介して重なる部分の形状を非線対称形とすることで、積層型圧電素子が駆動した際に素子の寸法変化が連続的に発生しても積層部分のはがれを抑止することができる。また、素子の寸法変化である変位がそろった場合に発生する共振現象を抑止することができるので、うなり音発生を防止することができるだけでなく、高調波信号の発生を防止することができるので、制御信号のノイズを抑止することとなり、アクチュエータの誤作動の抑止することができる。
- [0031] さらに異なる極性の内部電極が全ての素子側面で露出していることで、アクチュエータとして駆動させた際に素子に発生する応力を素子の外側まで伝播することができることから、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。
- [0032] さらに異なる極性を有する内部電極と外部電極との絶縁を取るためのパターンが内部電極に形成されていることで、素子の外側に絶縁防止の領域を設ける必要がないので、素子変位にともなう素子寸法変化で、絶縁防止部分がはがれたり、はがれてスパークすることができないので、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。
- さらに、前記内部電極パターンにC面またはR面が形成されていることで、素子変位の際、電極パターンの端部に応力集中することを避けることができるため、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。
- [0033] 本発明に係る第5の積層型圧電素子によれば、前記第1の内部電極の前記第2の外部電極に対向する対向端部を円弧形状とし、前記第2の内部電極の前記第1の外部電極に対向する対向端部を円弧形状とする、すなわち、内部電極と絶縁領域との境界をR状にすることで、内部電極と極性が異なる外部電極間に形成された絶縁領

域と内部電極との境界における応力集中を防止できる。このため、高電界、高圧力下で積層型圧電素子を長期間連続駆動させても、極性の異なる内部電極と外部電極間に生じるクラックの成長を抑止し、極性の異なる内部電極と外部電極間におけるショートを防止することができる。

- [0034] さらに、異なる極性を有する前記内部電極が前記圧電体を介して重なる部分の各隅部の形状がR状であれば、内部電極と極性が異なる外部電極間に形成された絶縁領域と内部電極との境界に応力が一点に集中することができないので、前記境界における応力集中を防止することができる。これにより、積層型圧電素子を高電界、高圧力下で長期間連続駆動させても、積層型圧電素子の駆動方向である積層方向に伸縮駆動させても、異なる極性を有する上下の内部電極の前記境界で発生する積層方向に生じるクラックを防止することができるので、素子の耐久性を高めることができる。
- [0035] さらに、前記内部電極を前記積層体の側面に露出させれば、前記内部電極同士に挟まれる圧電体の面積を広くできるので、前記圧電体の変位面積を大きくできることともに、駆動させた際に素子に発生する応力を素子の外側まで伝播することができるところから、変位量に優れた高信頼性の積層型圧電素子とすることができる。
- 従って、積層型圧電素子を連続駆動させても、所望の変位量が実効的に変化しないために、装置が誤作動することなく、耐久性に優れた高信頼性の噴射装置を提供することができる。
- [0036] また、本発明に係る第1ー第5の積層型圧電素子において、内部電極を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_1$ 、外部電極を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_2$ としたとき、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満とすることにより、積層型圧電素子を連続駆動させても、内部電極と外部電極の熱膨張係数の差が小さいので、素子の連続駆動回数が増加して素子温度が上昇しても、内部電極と外部電極との間で密着不良を防止できる。すなわち、連続駆動中のはがれや断線を抑制でき、実行変位量が小さくなる問題や、さらには、はがれた部分がスパークして破壊する問題を防止できる。これにより、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有することができる。

[0037] また、本発明に係る第1～第5の積層型圧電素子において、内部電極と外部電極の接合部に中間層を設けることにより、内部電極と外部電極の熱膨張差から生じる応力を緩和することができ、電極はがれを防止して、駆動中の耐久性を向上させることができる。

[0038] さらに、前記内部電極中に金属組成物とともに無機組成物を添加することにより、前記内部電極と前記圧電体の界面の密着強度が増大するため、前記内部電極と前記圧電体の界面における剥離を抑制することができる。

以上のように、本発明に係る積層型圧電素子によれば、変位量が大きくかつ積層型圧電素子を連続駆動させても所望の変位量の変化がない、耐久性に優れた高信頼性の噴射装置を提供することが可能となる。

#### 図面の簡単な説明

[0039] [図1A]本発明に係る実施の形態1の積層型圧電素子の斜視図。

[図1B]実施の形態1の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す展開斜視図。

[図2A]本発明に係る実施の形態2の積層型圧電素子の斜視図。

[図2B]実施の形態2の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す展開斜視図。

[図3]実施の形態2の積層型圧電素子の圧電体間に配された内部電極の拡大断面図である。

[図4A]本発明の積層型圧電素子の変形例の斜視図。

[図4B]本発明の積層型圧電素子の変形例の断面図。

[図5A]本発明に係る実施の形態3の積層型圧電素子の斜視図。

[図5B]実施の形態3の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す展開斜視図。

[図6A]実施の形態3の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す斜視展開図。

[図6B]実施の形態3の積層型圧電素子において、異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図7]実施の形態3の積層型圧電素子における内部電極と外部電極との距離を示す横断面図。

[図8A]本発明に係る実施例4の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図8B]本発明に係る実施例4の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図8C]本発明に係る実施例4の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図9A]本発明に係る実施例5の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図9B]本発明に係る実施例5の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図9C]本発明に係る実施例5の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図10A]本発明に係る実施の形態4の積層型圧電素子の斜視図。

[図10B]実施の形態4の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す展開斜視図。

[図10C]実施の形態4に係る変形例の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図10D]実施の形態4に係る変形例の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図10E]実施の形態4に係る変形例の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図11A]実施の形態4の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す斜視展開図。

[図11B]実施の形態4の積層型圧電素子において、異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図12]実施の形態4の積層型圧電素子における内部電極と外部電極との距離を示す横断面図。

す横断面図。

[図13A]本発明に係る実施例6の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図13B]本発明に係る実施例6の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図13C]本発明に係る実施例6の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図14A]本発明に係る実施例7の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図14B]本発明に係る実施例7の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図14C]本発明に係る実施例7の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図15]本発明に係る実施の形態5の積層型圧電素子における外部電極と内部電極の接合部分の断面の一部を拡大して示す図。

[図16]本発明に係る実施の形態6の噴射装置の断面図。

[図17A]比較例1の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図17B]比較例1の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図17C]比較例1の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図18A]比較例2の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図18B]比較例2の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図18C]比較例2の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図19A]比較例3の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図19B]比較例3の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図19C]比較例3の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図20A]比較例4の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図20B]比較例4の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図20C]比較例4の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図21A]比較例5の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図21B]比較例5の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図21C]比較例5の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図22A]比較例6の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図22B]比較例6の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図22C]比較例6の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図23A]比較例7の積層型圧電素子における一方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図23B]比較例7の積層型圧電素子における他方の極性の内部電極パターンを示す平面図。

[図23C]比較例7の積層型圧電素子における異なる極性の内部電極が圧電体を介して重なる部分を示す図。

[図24A]従来例の積層型圧電素子の斜視図。

[図24B]従来例の積層型圧電素子の圧電体層と内部電極層との積層状態を示す展開斜視図。

### 符号の説明

- [0040] 1, 11…圧電体、  
13…積層体、  
2, 12, 82, 92…内部電極、  
2a, 82a, 92a…電極部分、  
3…溝、  
4, 15, 85…外部電極、  
6…リード線、  
9, 14…不活性層、  
31…収納容器、  
33…噴射孔、  
35…バルブ、  
43…圧電アクチュエータ、  
10…積層型圧電体素子、  
20…空隙、  
31…収納容器、  
33…噴射孔、  
35…バルブ、  
43…圧電アクチュエータ、

### 発明を実施するための最良の形態

- [0041] 以下、図面を参照しながら本発明に係る実施の形態について説明する。

#### 実施の形態1.

図1は本発明に係る実施の形態1の積層型圧電素子の構成を示すもので、図1A

は斜視図、図1Bは圧電体層と内部電極層との積層状態を示す斜視展開図である。

- [0042] 本実施の形態1の積層型圧電素子は、図1A、図1Bに示すように、圧電体11と内部電極12とを交互に積層してなる積層体13の一対の対向する側面に外部電極が形成され、その外部電極15に内部電極12が一層おきに接続されている。すなわち、外部電極15が形成される積層体の側面には、一層おきに内部電極12が露出されてその露出された内部電極12に外部電極15が電気的に導通するように接合されている。また、積層体13の積層方向の両端には、複数の圧電体11を積層することにより(内部電極12を含むことなく)不活性層14が形成されている。ここで、本発明の積層型圧電素子を積層型圧電アクチュエータとして使用する場合には、外部電極15にリード線を半田により接続固定し、前記リード線を外部電圧供給部に接続すればよい。
- [0043] また、圧電体11間に配された内部電極12は、例えば、銀-パラジウム等の金属材料で形成されており、内部電極12を通じて各圧電体11に所定の電圧を印加することにより、圧電体11を逆圧電効果による変位を起こさせる。
- [0044] これに対して、不活性層14は内部電極12が配されていない複数の圧電体11の層であるため、電圧を印加しても変位を生じない。
- [0045] そして、本実施の形態1では、圧電体11の強度より圧電体11と内部電極12との間の接合強度を弱くしたことが特徴である。すなわち、圧電体11が内部電極12にクランプされた構造において、圧電体11と内部電極12との間の接合強度が圧電体11の強度以上であると、内部電極12に接合した圧電体11の界面部分は電圧を印加されても圧電変位が出来ないため、積層型圧電素子の変位量が小さくなる。これに対して、圧電体11の強度よりも圧電体11と内部電極12との間の接合強度を弱くすると、圧電体11と内部電極12との間の接合強度が圧電体11の強度以上である場合に比較して、積層型圧電素子の変位量を大きくできる。
- [0046] 以上のように、積層型圧電体素子の変位量を大きくするには、圧電体11の強度より圧電体11と内部電極12との間の接合強度を弱くすることが必要であるが、その接合強度は、好ましくは圧電体11の強度の70%以下、より好ましくは50%以下、よりいつそう好ましくは40%以下とする。このように、その接合強度を、圧電体11の強度の70%以下とすることで、内部電極12に接合した圧電体11の界面部分の残留応力を小

さくすることができ、積層型圧電素子の変位量を大きくすることができる。また、圧電体11と内部電極12との間の接合強度を、圧電体11の強度の50%以下、より好ましくは40%以下とするで、連続駆動時における耐久性を向上させることができる。

- [0047] また、本発明(実施の形態1)では、圧電体11と内部電極12との間の接合強度が70MPa以下であることが好ましい。これは、70MPaより大きくなると、内部電極が圧電体11をクランプする力が大きくなり、変位量が小さくなるからである。ただし、接合強度が0MPaでは積層型圧電素子自体が形状を保つことが出来ない。そのため、積層型圧電体素子の変位量を大きくするには、圧電体11の強度より圧電体11と内部電極12との間の接合強度が弱く、かつ、前記圧電体11と内部電極12との間の接合強度が0MPaより大きく70MPa以下であることが好ましい。
- [0048] なお、積層型圧電素子の変位量を大きくするためには、圧電体11と内部電極12との間の接合強度は50MPa以下が好ましい。また、積層型圧電素子の変位量を大きくかつ耐久性を向上させるためには、圧電体11と内部電極12との間の接合強度は40MPa以下がより好ましく、さらに耐久性を向上させるには、10MPa以上35MPa以下がさらに好ましい。
- [0049] ここで、圧電体11の強度と、圧電体11と内部電極12との間の接合強度の評価及び比較は以下のようにした。

評価に当たって、積層型圧電素子を、例えば、3mm×4mm×36mmに加工することにより、内部電極12の電極面が試験片の長手方向に略垂直になるようする。その試験片を、JIS R1601に規定されている4点曲げ強さ試験方法にて、長手方向に略垂直な方向から荷重を加えて、曲げ強さを測定する。このとき、試験片が内部電極12と圧電体11の界面で破壊した時の値を圧電体と内部電極との間の接合強度とし、試験片が圧電体11の箇所で破壊した時の値を圧電体の強度(曲げ強度)とした。

- [0050] さらに本発明に係る実施の形態1のより好ましい形態では、前記外部電極15と内部電極12との間の接合強度が圧電体11と内部電極12との接合強度よりも大きくする。このように、圧電体11と内部電極12との間の接合強度が外部電極15と内部電極12の強度以上であれば、積層型圧電素子の連続駆動時における耐久性を向上できる。

- [0051] 本発明において、圧電体11の強度より圧電体11と内部電極12との間の接合強度を弱くする具体的方法(製造方法)としては、(1)圧電体11の表面粗さを小さくして、圧電体11と内部電極12との接合時のアンカー効果を小さくする方法、(2)焼成時の圧電体11と内部電極12との接合部の結晶成長を押さえる目的で、内部電極12が焼結を開始する焼結開始温度を、圧電体11が焼結を開始する焼結開始温度より低温になるように、材料組成を選定する方法、(3)圧電体11と内部電極12との接合箇所の面積を少なくするために、内部電極の占有面積を小さくする方法、(4)圧電体11と内部電極12との間にガラス層を形成する方法、などがある。
- [0052] 具体的な方法(一例)としては、圧電体11と内部電極12との界面に、圧電体11が焼結を開始する焼結開始温度よりも低温の液相が形成できるように、例えば、内部電極12を構成する金属の粉末とともに、その金属酸化物の粉末を加えて電極パターンを印刷する。
- [0053] このように、内部電極12が焼結を開始する焼結開始温度を、圧電体11が焼結を開始する焼結開始温度より低温にすることで、同時焼成の際、最初に内部電極12部分に液相が生成することになり内部電極12単独で焼結が進行する。圧電体11と内部電極12との間にガラス層を形成する場合は、液相がガラス層となるように冷却速度を100°C／時間よりも速くする。
- [0054] さらに、内部電極12が硬度の高い金属で構成されると、圧電体11と内部電極12との接合強度が高まるので、内部電極12を硬度の低い金属で構成する。
- [0055] 次に、本発明の積層型圧電素子の製法を説明する。
- [0056] 本実施の形態1の積層型圧電素子を作成するには、まず、 $PbZrO_3-PbTiO_3$ 等からなるペロブスカイト型酸化物の圧電セラミックスの仮焼粉末と、アクリル系、ブチラール系等の有機高分子から成るバインダーと、DBP(フタル酸ジブチル)、DOP(フタル酸ジオキル)等の可塑剤とを混合してスラリーを作製する。そして、該スラリーを周知のドクターブレード法やカレンダーロール法等のテープ成型法により圧電体11となるセラミックグリーンシートを作製する。
- [0057] 次に、銀-パラジウム等の内部電極12を構成する金属粉末に、酸化銀等の金属酸化物、バインダー及び可塑剤等を添加混合して導電性ペーストを作製し、これを前

記各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1～40 μmの厚みに印刷する。  
。

[0058] そして、上面に導電性ペーストが印刷されたグリーンシートを複数積層し、この積層体を所定の温度で脱バインダーを行った後、900～1200°Cで焼成することによって積層体13が作製される。

[0059] このとき、不活性層14の部分のグリーンシート中に、銀一パラジウム等の内部電極12を構成する金属粉末を添加したり、不活性層14の部分のグリーンシートを積層する際に、銀一パラジウム等の内部電極を構成する金属粉末および無機化合物とバインダーと可塑剤からなるスラリーをグリーンシート上に印刷することで、不活性層14とその他の部分の焼結時の収縮挙動ならびに収縮率を一致させることができるので、緻密な積層体を形成することができる。

[0060] なお、積層体13は、上記製法によって作製されるものに限定されるものではなく、複数の圧電体11と複数の内部電極12とを交互に積層してなる積層体13を作製できれば、どのような製法によって形成されても良い。

[0061] その後、積層型圧電素子の側面に端部が露出する内部電極12と端部が露出しない内部電極12とを交互に形成して、端部が露出していない内部電極12と外部電極15間の圧電体部分に溝を形成して、この溝内に、圧電体11よりもヤング率の低い、樹脂またはゴム等の絶縁体を形成する。ここで、前記溝は内部ダイシング装置等で積層体13の側面に形成される。

[0062] 外部電極15を構成する導電材は、アクチュエータ(積層体)の伸縮によって生じる応力を十分に吸収するという点から、ヤング率の低い銀、若しくは銀が主成分の合金が望ましい。

[0063] 例えば、外部電極15は、以下のようにして形成する。

まず、銀、若しくは銀が主成分の合金粉末とガラス粉末に、バインダーを加えて銀ガラス導電性ペーストを作製し、これをシート状に成形して、シートの生密度が6～9g/cm<sup>3</sup>になるように制御し、乾燥する(溶媒を飛散させる)。そして、このシートを、柱状積層体13の外部電極形成面に転写する。

次に、ガラスの軟化点よりも高い温度、銀の融点(965°C)以下の温度で、且つ焼成

温度(°C)の4/5以下の温度で焼き付けを行う。これにより、銀ガラス導電性ペーストを用いて作製したシート中のバインダー成分が飛散消失し、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極15を形成することができる。

- [0064] なお、前記銀ガラス導電性ペーストの焼き付け温度は、ネック部を有効的に形成し、銀ガラス導電性ペースト中の銀と内部電極12を拡散接合させ、また、外部電極15中の空隙を有効に残存させ、さらには、外部電極15と柱状積層体13側面とを部分的に接合させるという点から、550～700°Cが望ましい。また、銀ガラス導電性ペースト中のガラス成分の軟化点は、500～700°Cが望ましい。
- [0065] 焼き付け温度が700°Cより高い場合には、銀ガラス導電性ペーストの銀粉末の焼結が進みすぎ、有効的な3次元網目構造をなす多孔質導電体を形成することができず、外部電極15が緻密になりすぎてしまう。その結果、外部電極15のヤング率が高くなりすぎ駆動時の応力を十分に吸収することができずに外部電極15が断線してしまう可能性がある。好ましくは、ガラスの軟化点の1.2倍以内の温度で焼き付けを行った方がよい。
- [0066] 一方、焼き付け温度が550°Cよりも低い場合には、内部電極12端部と外部電極15の間で十分に拡散接合がなされないために、ネック部が形成されず、駆動時に内部電極12と外部電極15の間でスパークを起こしてしまう可能性がある。
- [0067] なお、銀ガラス導電性ペーストのシートの厚みは、圧電体11の厚みよりも薄いことが望ましい。さらに好ましくは、アクチュエータの伸縮に追従するという点から、 $50\text{ }\mu\text{m}$ 以下がよい。
- [0068] 次に、外部電極15を形成した積層体13をシリコーンゴム溶液に浸漬するとともに、シリコーンゴム溶液を真空脱氣することにより、積層体13の溝内部にシリコーンゴムを充填し、その後シリコーンゴム溶液から積層体13を引き上げ、積層体13の側面にシリコーンゴムをコーティングする。その後、溝内部に充填、及び柱状積層体13の側面にコーティングした前記シリコーンゴムを硬化させることにより、本発明の積層型圧電素子が完成する。
- [0069] そして、外部電極15にリード線を接続し、該リード線を介して一対の外部電極15に0.1～3kV/mmの直流電圧を印加し、積層体13を分極処理することによって、本

発明の積層型圧電素子を利用した積層型圧電アクチュエータが完成する。このように作製した積層型圧電アクチュエータのリード線を外部の電圧供給部に接続し、リード線及び外部電極15を介して内部電極12に電圧を印加すると、各圧電体11は逆圧電効果によって大きく変位する。これによって例えばエンジンに燃料を噴射供給する自動車用燃料噴射弁として機能する。

[0070] 本発明の積層型圧電素子はこれらに限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲であれば種々の変更は可能である。

[0071] また、上記では、積層体13の対向する側面に外部電極15を形成した例について説明したが、本発明では、例えば、隣接する側面に一対の外部電極を形成してもよい。

[0072] 実施の形態2.

図2A、図2Bは、本発明に係る実施の形態2の積層型圧電素子の構成を示すもので、図2Aは斜視図、図2Bは断面図である。また図3は、図2の積層型圧電素子の内部電極付近の一部断面の拡大図である。

[0073] この実施の形態2の積層型圧電素子10は、内部電極2が制御された空隙20を有していることを特徴とし、その点を除けば、実施の形態1の積層型圧電素子とほぼ同様の構造を有している。

[0074] すなわち、実施の形態2の積層型圧電素子10は、図2に示すように、圧電体1と内部電極2とを交互に積層してなる積層体の一対の対向側面に、外部電極4が形成されてなり、その側面においてそれぞれ、外部電極4は一層おきに露出した内部電極2の端部と、電気的に導通するように接合されている。また、実施の形態1と同様、積層型圧電素子10の両端には不活性層9設けられており、この本実施の形態2の積層型圧電素子10を積層型圧電アクチュエータとして使用する場合には、外部電極4にリード線6を半田により接続固定し、前記リード線6を外部電圧供給部に接続することにより、逆圧電効果によって圧電体1を変位させる。

[0075] そして本実施の形態2の積層型圧電素子10では、図3に示すように圧電体1間に挟まれた内部電極2の中に空隙20を設けるとともに、内部電極2の断面において、該空隙20部分が全断面積の5～70%占めるように制御されている。すなわち、本発明

は、本発明者が鋭意検討の結果、図3に示すように圧電体1間に挟まれた内部電極2の中に、一定の範囲内の割合で空隙20を設けることにより、変位量が大きくでき、優れた積層型圧電素子を得ることができることを見出して完成させたものである。

[0076] 内部電極2内にこのように制御された空隙20が無い従来のタイプでは、電界を受けて圧電体1が変形する際に、内部電極2からの束縛を受けて変形量が小さくなり、充分な積層型圧電素子の変位量を得ることができなかつた。

これに対して、本発明の内部電極2中に空隙20がある積層型圧電素子は、圧電体の変形が自由になり、従来に比べて変形量を大きくできる。

[0077] ここで、上述した内部電極2の面積に対する空隙の占める割合(空隙率)について説明する。空隙率は積層型圧電素子を積層方向に切断した面で測定する。その切断面において、内部電極の部分に存在する空隙の面積を測定し、その空隙の面積の総和を内部電極2の面積(空隙も含む)で除した値を100倍したものである。

また、空隙率が5%より少ないと圧電体1が電界を印加されて変形する際に内部電極2から束縛を受け、圧電体1の変形が抑制され、積層型圧電素子の変形量が小さくなる。また、発生する内部応力も大きくなるために耐久性にも悪い影響を与える。

[0078] 一方、空隙率が70%より大きいと、空隙20間の電極部分2aに極端に細い部分が生じる為、内部電極2自体の強度が低下し、内部電極2にクラックが生じやすくなり、最悪は断線等を生じる恐れがあるので好ましくない。併せて、内部電極2の導電性が低下するため、圧電体1に電圧を印加し難くなり、充分な変位量を得られない場合がある。

尚、図3に示すように、空隙20は電極部分2a間に設けたものだけではなく、電極部分2aの内部に包含されたような状態で存在しても良い。

[0079] さらに、前記空隙率は、より好ましくは7～70%、さらに好ましくは10～60%である。このようにすることで、圧電体1をよりスムーズに変形できるとともに、内部電極2の導電性を充分に有しているため、積層型圧電素子10の変位量を増大することができる。

[0080] また、空隙20は、断面における最大幅が $1\mu m$ 以上であることが好ましい。このように、断面における空隙の最大幅を $1\mu m$ 以上とすると、内部電極が圧電体

を拘束する力が小さくなり圧電体が変形しやすくなるので変位量を大きくでき、発生する応力も低減できるので耐久性に優れた積層型圧電素子を提供できる。

この最大幅は、積層型圧電素子の積層方向の断面において、内部電極の断面に存在する空隙の大きさを電極に平行な線を引きその線上の長さを測定し、測定値で最大の値である。空隙20の最大幅は、より変位量を大きくできるということと、内部応力を軽減し、耐久性を向上すると言う観点から、 $2 \mu m$ がより好ましく、 $3 \mu m$ がさらに好ましい。

- [0081] また、前記内部電極2断面において電極部分2aと空隙20の界面が圧電体1に接する部分における電極部分2aの接線22と圧電体1とのなす角度24が60度以上であることが好ましい。この角度24は、図3に示すように、積層型圧電素子の積層方向の断面において、電極部分2aと空隙2の界面が圧電体1と接する点を起点とし、電極部分2aに接するように線を引き、この接線22と圧電体1とのなす角度24で表される。
- [0082] ここで、角度24が60度未満であると、内部電極2中の電極部分2aが圧電体1と接してできるメニスカスの部位が大きくなるため、内部電極2が圧電体1を拘束する力が大きくなり、変位量が低下する可能性がある。さらに、角度24は、内部電極2が圧電体1を拘束する力が小さくなるという理由で変位量を大きくできること、内部応力を小さくし、耐久性を向上させるとする観点から、70度以上がより好ましく、80度以上であることがさらに好ましい。
- [0083] また、内部電極2中の金属組成物が8ー10族金属および／または11族金属を主成分とすることが望ましい。これは、8ー10族金属および11族金属は、圧電体1と濡れ性が悪いため、圧電体1と内部電極2との界面に空隙が発生しやすくなり、それらを積層して焼成すると、比較的高い空隙を有する内部電極2を形成することができるからである。
- [0084] さらに、内部電極2に、電極部分2aを構成する材質と濡れ性の悪い無機組成物を添加することが好ましい。これは、濡れ性の悪い無機組成物が内部電極2にあることにより、焼成の際に、電極部分を構成する材料と濡れ性が悪いので、この無機組成物の周囲の電極部分2aがはじかれ、周囲には電極部分2aの無い部分つまり空隙20が形成されるからである。このように、空隙形成の面で有利となる結果、変位量を向

上させることができる。ここで、上記無機組成物としては、BN、TiN、ZrN等の窒化物を主成分とすることが好ましく、BNを主成分とすることがさらに好ましい。尚、無機組成物は圧電体1の表面に形成したものでも良い。

[0085] 次に、本実施の形態2の積層型圧電素子10の製法を説明する。

この製造方法では、まず、実施の形態1と同様にして、圧電体1となるセラミックグリーンシートを作製する。

次にこのグリーンシートを適当な大きさにカットし、枠に固定する。

[0086] 次に、銀一パラジウム等の内部電極2を構成する金属粉末にバインダー、可塑剤等を添加混合して導電性ペーストを作製し、これを前記各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1～40 μmの厚みに印刷する。この際、内部電極を構成する金属粉末は、焼成後に内部電極2に空隙ができるように、融点の異なる2種以上の材料を用いることが重要であり、材料としては金属または合金であることが好ましい。そして、内部電極2を構成する金属または合金の最も低い融点以上、且つ他の金属の融点以下の温度で仮焼すると、融点以上になって融けた金属または合金が毛管現象により、内部電極中の空孔に移動し、移動した部分が空隙になる。このようにして、本発明の空隙を有する内部電極2を作製することができる。尚、前記空孔は、例えば、前記導電性ペーストを調製する際に前記金属粉末間にできる僅かな隙間、または前記バインダー部分が脱バインダーにより生じた隙間等により形成することができる。

[0087] また、この他にも、内部電極2を構成する材質に、該材質と濡れ性の悪い材質を添加して空隙20を形成しても良い。さらに、内部電極2が印刷されるグリーンシート面に内部電極2を構成する材質と濡れ性の悪い材質を設けることでも空隙20を形成することもできる。

[0088] 次に、同様に銀一パラジュウム等の焼結助剤となる成分を含むダミー層をグリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1～40 μm印刷し、不活性層9用のグリーンシートを用意する。

そして、上面に導電性ペーストが印刷されたグリーンシートと不活性層9用のグリーンシートを積層型圧電素子の端部に不活性層9がくるように複数積層し、同時に圧力をかけて密着させる。

[0089] この後、グリーンシートを適當な大きさにカットし、所定の温度で脱バインダーを行つた後、900～1050°Cで焼成することによって積層型圧電素子10が作製される。焼成の際に、内部電極を構成する金属または合金のうち、融点の低い金属または合金の融点以上で2番目に低い金属または合金の融点より低温で温度を保持した後に昇温し焼成することが重要である。

[0090] なお、積層型圧電素子10は、上記製法によって作製されるものに限定されるものではなく、内部電極に空隙を作る方法であれば、どのような製法によって形成されても良い。

その後は、実施の形態1と同様にして、実施の形態2の積層型圧電素子10を完成させる。

また、上記では、積層型圧電素子10の対向する側面に外部電極4を形成した例について説明したが、本発明では、例えば隣設する側面に一対の外部電極を形成してもよい。

[0091] 実施の形態3.

本発明に係る実施の形態3の積層型圧電素子について以下に説明する。図5A、図5Bは、実施の形態3の積層型圧電素子の構成を示すもので、図5Aは斜視図、図5Bは圧電体層と内部電極層との積層状態を示す斜視展開図である。また、図6A、図6Bは本実施の形態3の積層型圧電素子の内部電極パターンを示す拡大図で、図6Aは圧電体層と内部電極層との積層状態を示す斜視展開図、図6Bは異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを示す透視図である。

[0092] 本実施の形態3の積層型圧電素子は、図に示すように、内部電極と外部電極が実施の形態1及び2と異なっている他は、実施の形態1及び2と同様に構成される。

[0093] すなわち、実施の形態3の積層型圧電素子では、図6Aに示すように、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が非線対称形であることを特徴としている。ここで、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aとは、積層型圧電素子の圧電体11を介して形成され、異なる極性の電圧を印加される内部電極82の電極パターン同士が重なり合う領域を示している。実際のところ、圧電体11は異なる極性の電界が印加される内部電極82に挟まれた領域(上

述した異なる極性の内部電極82同士が圧電体11を介して重なる部分82a)で実効的に圧電変位して、積層型圧電素子として動作する。そこで、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が線対称形状であると、山の稜線のように、変位の大きくなる部分が対称の中心線となる一直線にそろってしまうため、素子を駆動させると対称の中心線となる一直線が最も変位が激しくなり、一直線上にある素子側面が起点となり、積層部分がはがれて破壊するので好ましくない。さらに、変位がそろった一直線が存在することで、共振現象が発生して、うなり音が発生したり、駆動周波数の整数倍の高調波信号が発生してノイズ成分となって、アクチュエータとして用いた場合、誤作動の原因となるので好ましくない。

[0094] これに対して、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状を非線対称形とすると、積層型圧電素子が駆動した際に素子の寸法変化が連続的に発生しても積層部分のはがれを抑止することができる。また、素子の寸法変化である変位がそろった場合に発生する共振現象を抑止することができるので、うなり音発生を防止することができるだけでなく、高調波信号の発生を防止することができるので、制御信号のノイズを抑止することとなり、アクチュエータの誤作動を抑止することができる。ここで、非線対称形というのは、線対称をとりえない形状であることを示している。即ち、どの方向から見ても左右対称の形状をとらないことである。

[0095] さらに本発明では、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が点対称形であることが好ましい。異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が点対称でない場合、素子を変位させると、素子変位の中心軸がそろっていないために、変位の軸がぶれるため好ましくない。内部電極82形状が点対称形であることにより、素子変位の中心軸が一直線になり、素子変位の軸がぶれないため、変位方向が一直線となる変位のぶれない耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。

[0096] ここで、点対称とは、いわゆる対称中心が存在する形状であることを示している。本発明においては、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの面内に任意の1点を規定し、その1点を中心にして、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを面に平行になるように回転させた場合、180

° 以内の回転角で、回転前後の形状が重なり合うことである。そして、この時の回転の中心となる点が、対称中心である。点対称としては、180° 回転対称、120° 回転対称、90° 回転対称がよく知られているが、内部電極82と外部電極85の導通を確保する経路を最小限に押さえることができることで、簡単な構造で精度良く積層型圧電素子を作製することが可能な180° 回転対称が好ましい。

[0097] また、対称の中心が、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの重心であると、積層型圧電素子の全ての異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの重心が積層方向に一直線にそろうため、変位方向の中心軸が一直線となるだけではなく、重心が変位方向の中心軸と一致するので、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができるので、さらに好ましい。

[0098] さらに本発明では、異なる極性の内部電極82が全ての素子側面で露出していることが好ましい。内部電極82が素子側面で露出していない部分では、電極の露出していない箇所は、駆動時に変位できないことから、駆動時に変位する領域が素子内部に閉じ込められているために変位時の応力が電極のある部分と無い部分の境目に集中し、耐久性に問題が生じるので好ましくない。異なる極性の内部電極82が全ての素子側面で露出していることで、アクチュエータとして駆動させた際に素子に発生する応力を素子の外側まで伝播することができることから、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。

[0099] さらに本発明では、異なる極性の外部電極85との絶縁を取るためのパターンが内部電極82に形成されていることが好ましい。異なる極性の外部電極85との絶縁を取るためのパターンが内部電極82に形成されていないと、短絡する問題がある。異なる極性の外部電極85との絶縁を取るためのパターンが内部電極82に形成されていることで、素子の外側に絶縁防止の領域を設ける必要がないので、素子変位にともなう素子寸法変化で、絶縁防止部分がはがれたり、はがれてスパークすることができないので、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。

[0100] さらに本発明では、異なる極性の内部電極82と外部電極85との距離L1が0.1～5mmであることで、変位量を大きくかつ絶縁破壊を防止することを両立した、耐久性に

優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。5mmを超えると、内部電極面積の減少に伴い、圧電体11の駆動領域が小さくなるので好ましくない。0.1mmよりも小さいと絶縁特性が急激に劣化する。

駆動寸法を大きくして、耐久性を高めるには、0.1mm以上3mm以下が好ましく、0.5mm以上1mm以下がさらに好ましい。ここで、距離L1とは、内部電極82が配された圧電体11上における内部電極82と外部電極85との絶縁距離であり、該絶縁距離の最短距離を示している。

- [0101] さらに本発明では、図7に示すように、素子表面での異なる極性の内部電極82と外部電極85の距離L2が0.1mm～5mmであることで、変位量を大きくかつ絶縁破壊を防止することを両立した、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。5mmを超えると、内部電極面積の減少に伴い、圧電体11の駆動領域が小さくなるので好ましくない。0.1mmよりも小さいと絶縁特性が急激に劣化する。
- [0102] 駆動寸法を大きくして、耐久性を高めるには、0.1mm以上3mm以下が好ましく、0.5mm以上1mm以下がさらに好ましい。ここで、距離L2とは、積層体80の側面における1つの内部電極82と外部電極85との絶縁距離であり、該絶縁距離の最短距離を示している。
- [0103] さらに本発明では、内部電極82パターンにC面またはR面が形成されていることで、素子変位の際、電極パターンの端部に応力集中することを避けることができるため、変位量が大きく耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。電極パターンの全てにC面またはR面が形成されると耐久性が向上するので好ましい。圧電体11自体がC面またはR面が形成されると、より耐久性が向上するので好ましい。電極パターンの全ての外周が曲線で形成されると、さらに変位量が大きく耐久性が向上するので好ましい。
- [0104] 次に、本実施の形態3の積層型圧電素子の製法を説明する。
- 本製造方法では、まず、実施の形態1及び2と同様にして、セラミックグリーンシート、及び内部電極82用の導電性ペーストを作製する。
- そして、導電性ペーストを各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1～4

0 μ mの厚みに印刷する。

[0105] このとき、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状を非線対称形となるように内部電極パターンを形成する。

そして、上面に導電性ペーストが印刷されたグリーンシートを複数積層し、この積層体について所定の温度で脱バインダーを行った後、900～1200°Cで焼成することによって積層体80が作製される。

[0106] このとき、不活性層14の部分のグリーンシート中に、銀一パラジウム等の内部電極82を構成する金属粉末を添加したり、不活性層14の部分のグリーンシートを積層する際に、銀一パラジウム等の内部電極82を構成する金属粉末および無機化合物とバインダーと可塑剤からなるスラリーをグリーンシート上に印刷することで、不活性層14と他の部分の焼結時の収縮挙動ならびに収縮率を一致させることができるので、好ましいことは、実施の形態1及び2と同様である。

なお、積層体80は、上記製法によって作製されるものに限定されるものではなく、複数の圧電体11と複数の内部電極82とを交互に積層してなる積層体80を作製できれば、どのような製法によって形成されても良い。

[0107] 以下、実施の形態1及び2と同様にして、実施の形態3の積層型圧電素子を製造することができる。

[0108] 本発明の積層型圧電素子はこれらに限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲であれば種々の変更は可能である。

また、上記では、積層体80の対向する側面に外部電極85を形成した例について説明したが、本発明では、例えば隣設する側面に一対の外部電極を形成してもよい。

[0109] 実施の形態4.

次に、本発明に係る実施の形態4の積層型圧電素子について以下に説明する。図10A、図10Bは本実施の形態4の積層型圧電素子の構成を示すもので、図10Aは斜視図、図10Bは圧電体と内部電極との積層状態を示す斜視展開図である。また、図11は本発明の積層型圧電素子の内部電極パターンを示す拡大図で、図11Aは圧電体と内部電極との積層状態を示す斜視展開図、図11Bは異なる極性を有する

内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す透視図である。

- [0110] 本実施の形態4の積層型圧電素子は、内部電極の構成が実施の形態3と異なって  
いる以外は、実施の形態3とほぼ同様に構成されている。
- [0111] すなわち、実施の形態4の積層型圧電素子では、圧電体11と内部電極92とを交互  
に積層してなる積層体13の一対の対向する側面に、外部電極85が形成され、その  
外部電極85と内部電極92とが以下のように接続される。ここで、一対の側面の一方  
に形成された外部電極85は、正極の外部電極であり、他方に形成された外部電極  
は負極又はグランド用の外部電極である。そして、積層体90において、正極用の内  
部電極92と負極用の内部電極92は交互に配置されており、一方の側面において、  
外部電極85は、正極用の内部電極92に接続され、負極用の内部電極92とは絶縁  
領域96によって絶縁分離されている。また、他方の側面において、外部電極85は、  
負極用の内部電極92に接続され、正極用の内部電極92とは絶縁領域96によって  
絶縁分離されている。
- [0112] ここで、特に実施の形態4の積層型圧電素子では、圧電体11の主面に形成された  
絶縁領域96と内部電極92の境界を、図10Bに示すように、円弧形状(R状)としたこ  
とを特徴としている。このように絶縁領域96と内部電極92の境界を円弧形状にした  
のは、内部電極92と絶縁領域96との境界が直線状であると、境界の一部にクラック  
が発生した場合、その一点を起点にして境界に沿ってクラックが直線状に成長して素  
子を破壊することを見出したからである。また、内部電極92と絶縁領域96との境界に  
直線同士を付き合わせたような角形状の端部を有する内部電極パターンにより形成  
されていると、前記角形状の端部に応力が集中して絶縁領域96にクラックが発生す  
るおそれがあるからである。このようにクラックが発生するとそのクラックを伝って極性  
の異なる内部電極92と外部電極85間でショートが起こり、積層型圧電体素子の耐久  
性が著しく低下する。
- [0113] なお、図10Bでは、内部電極92のパターンが絶縁領域96に向かって凸型でR状  
に形成されているが、本発明では内部電極92と絶縁領域96の境界がR状であれば  
よいため、前記凸型に限るものではない。例えば、内部電極92のパターンを絶縁領  
域96に向かって凹型に形成したり、R状を有する凸型と凹型と交互に連続して形成

されているものでもよい(例えば、図10C, 10D, 10E参照)。

- [0114] また、上述したことから明らかなように、積層型圧電素子の耐久性をより高くするためには、凸型あるいは凹型のどちらかのR状であることが好ましく、異なる曲率半径を有する曲部が複数あるよりも单一の曲率半径を有する曲部で前記境界を形成する方が耐久性に優れているので好ましい。さらには、積層型圧電素子に電圧を印加して素子を変位させた後、電圧を解除した際、内部電極に素子側面から圧縮の応力がかかるため、耐久性をさらに高めるには、凹型が好ましい。
- [0115] また、異なる極性を有する内部電極92同士が圧電体11を介して重なる部分の形状がR状であることが好ましい。これは、異なる極性の内部電極に挟まれた圧電体11の領域が実効的に変位する領域であるので、前記重なる部分の端部の形状が直線状であれば、前記境界に応力が集中し、そこでクラックが発生しやすくなる。そのため、異なる極性を有する上下の内部電極92間に挟まれた圧電体11は積層型圧電素子の駆動方向である積層方向に伸縮駆動するため、前記境界から積層方向に前記クラックが成長しやすくなり、極性が異なる内部電極92同士をつなぐようなクラックが生じてショートする可能性がある。
- [0116] そして、上記した異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aの形状は点対称形であることが好ましい。これは、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aの形状が点対称でない場合、素子を変位させると、素子変位の中心軸がそろっていないために、変位の軸がぶれるため好ましくない。内部電極92形状が点対称形であることにより、素子変位の中心軸が一直線になり、素子変位の軸がぶれないため、変位方向が一直線となる変位のぶれない耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。
- [0117] ここで、点対称とは、いわゆる対称中心が存在する形状であることを示している。即ち、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aの面内に任意の1点を規定し、その1点を中心にして、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを面に平行になるように回転させた場合、 $180^\circ$  以内の回転角で、回転前後の形状が重なり合うことである。そして、この時の回転の中心となる点が、対称中心である。点対称としては、 $180^\circ$  回転対称、 $120^\circ$  回転対称、 $90^\circ$  回

転対称がよく知られているが、内部電極92と外部電極85の導通を確保する経路を最小限に押さえることができることで、簡単な構造で精度良く積層型圧電素子を作製することが可能な180°回転対称が好ましい。

[0118] さらに、対称の中心が、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aの重心であると、積層型圧電素子の全ての異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aの重心が積層方向に一直線にそろうため、変位方向の中心軸が一直線となるだけではなく、重心が変位方向の中心軸と一致するので、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができるるので、さらに好ましい。

[0119] また、内部電極92が積層体13の側面に露出させることができることも好ましい。これは、内部電極92が素子側面で露出していない部分では、電極の露出していない箇所は、駆動時に変位できないことから、駆動時に変位する領域が素子内部に閉じ込められているために変位時の応力が前記境界に集中しやすくなり、耐久性に問題が生じるので好ましくないからである。

[0120] ここで、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aとは、図11Aに示すように、異なる極性の電圧を印加される内部電極92の電極パターンが圧電体11に配されており、図11Bに示すように、前記電極パターン同士が圧電体11を介して重なり合う領域で示される。実際のところ、圧電体11は異なる極性の電界が印加される内部電極92に挟まれた領域(上述した異なる極性の内部電極92同士が圧電体11を介して重なる部分92a)で実効的に圧電変位して、積層型圧電素子は駆動する。

[0121] また、前記R状の曲率半径Rが0.5～10mmであることが好ましい。これは、前記R状の曲率半径Rが0.5mm未満であると、曲率が小さいために、実際には、内部電極92と絶縁領域96との境界が直線同士を付き合わせたような角形状の端部が内部電極パターンに形成されていることと同じであり、端部に応力が集中して絶縁領域である圧電体にクラックが発生しやすいからである。また、曲率半径Rが0.5～10mmであれば、内部電極と前記絶縁領域との境界の一部にクラックが発生した場合でも、境界が曲線であるためにクラックが境界に沿って一気に直線状に成長するのを抑

制することができる。このようなクラックが発生すると、クラックを伝って異なる極性の内部電極同士がショートして積層型圧電体素子が破壊するおそれがある。

- [0122] 10mmを超えると、逆に曲率が大きくなり、内部電極92と絶縁領域96との境界が直線状であることと同じ現象が発生し、境界の一部にクラックが発生した場合、その一点を起点にして境界に沿ってクラックが成長して素子を破壊するからである。
- [0123] 前記R状の曲率半径Rは、より好ましくは1～5mmとすることで耐久性を高めることができる。さらには1～3mmとすることで耐久性が高く積層型圧電素子を小型化することができる。
- [0124] また、内部電極92に空隙21を設け、該内部電極92の断面における全断面積に対する空隙21の占める面積比が5～70%であることが好ましい。これは、空隙21を内部電極92の面積に対して5～70%占めるようにすると、変位量が大きくなり、変位量に優れた積層型圧電素子を得ることができるからである。
- 内部電極92に空隙21が無いと、電界を受けて圧電体11が変形する際に、内部電極92からの束縛を受けやすいため、変形量が小さくなり、充分な積層型圧電素子の変位量を得ることができない。これに対して、内部電極92中に空隙21がある積層型圧電素子は、圧電体の変形が自由になり、変形量が大きくなる。
- [0125] ここで、上述した内部電極92の面積に対する空隙21の占める割合(空隙率)は、積層型圧電素子を積層方向に切断した面で測定する。その切断面において、内部電極の部分に存在する空隙の面積を測定し、その空隙の面積の総和を内部電極2の面積(空隙も含む)で除した値を100倍したものである。
- [0126] また、空隙率が5%より少ないと圧電体11が電界を印加されて変形する際に内部電極92から束縛を受け、圧電体11の変形が抑制され、積層型圧電素子の変形量が小さくなる。また、発生する内部応力も大きくなるために耐久性にも悪い影響を与える。
- [0127] 一方、空隙率が70%より大きいと、空隙21間の電極部分に極端に細い部分が生じる為、内部電極92自体の強度が低下し、内部電極92にクラックが生じやすくなり、最悪は断線等を生じる恐れがあるので好ましくない。併せて、内部電極92の導電性が低下するため、圧電体11に電圧を印加し難くなり、充分な変位量を得られない場合

がある。

尚、空隙21は電極部分間に設けたものだけではなく、電極部分の内部に包含されたような状態で存在しても良い。

[0128] さらに、前記空隙率は、より好ましくは7～70%、さらに好ましくは10～60%である。このようにすることで、圧電体11をよりスムーズに変形できるとともに、内部電極92の導電性を充分に有しているため、積層型圧電素子の変位量を増大することができる。

[0129] また、空隙21の断面における最大幅が $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。最大幅とは、積層型圧電素子の積層方向の断面において、内部電極の断面に存在する空隙の大きさを電極に平行な線を引きその線上の長さを測定し、測定値で最大の値を最大幅とした。さらに、空隙21の最大幅は、変位量を大きくできるということと、内部応力を軽減し、耐久性を向上するという観点から、 $2\text{ }\mu\text{m}$ がより好ましく、 $3\text{ }\mu\text{m}$ がさらに好ましい。

[0130] また、前記内部電極92断面において電極部分と空隙の界面が圧電体11に接する部分を起点とする電極部分への接線22と圧電体11とのなす角度23が60度以上であることが好ましい。この角度は、積層型圧電素子の積層方向の断面において、電極部分と空隙21の界面が圧電体11と接する点を起点とし、電極部分に接するように線を引き、この接線22と圧電体11とのなす角度23で表される。

[0131] ここで、角度23が60度未満であると、内部電極92中の電極部分が圧電体11と接してできるメニスカスの部位が大きくなるため、内部電極92が圧電体11を拘束する力が大きくなり、変位量が低下する可能性がある。さらに、角度は、内部電極92が圧電体11を拘束する力が小さくなるという理由で変位量を大きくできること、内部応力を小さくし、耐久性を向上させるとする観点から、70度以上がより好ましく、80度以上であることがさらに好ましい。

[0132] また、積層体13が多角形柱状体であることが好ましい。これは、積層体13が円柱状体であると、真円にしなければ中心軸がぶれてしまうため高精度の円を作つて積みあげなければならず、同時焼成による量産型の製法を用いるのが困難になり、また、略円形状の積層体を積層後、あるいは焼成後に外周を研磨して円柱状にしても、

内部電極の中心軸を高精度にそろえるが困難になる。これに対して、多角形柱状体であれば、基準線を決定した圧電体に内部電極を形成することができ、さらに基準線に沿って積層することができるので、駆動の軸である中心軸を量産型の製法をもつて形成することができるため、耐久性の高い素子とすることができます。

[0133] また、異なる極性の内部電極92と外部電極85との距離L1が0.1～5mmであることで、変位量を大きくかつ絶縁破壊を防止することを両立した、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。5mmを超えると、内部電極面積の減少に伴い、圧電体11の駆動領域が小さくなるので好ましくない。0.1mmよりも小さいと絶縁特性が急激に劣化する。

駆動寸法を大きくして、耐久性を高めるには、0.1mm以上3mm以下が好ましく、0.5mm以上1mm以下がさらに好ましい。ここで、距離L1とは、内部電極92が配された圧電体11上における内部電極92と外部電極85との絶縁距離であり、該絶縁距離の最短距離を示している(図12に示す)。

[0134] さらに本発明では、素子表面での異なる極性の内部電極92と外部電極85の距離L2(図12に示す)が0.1mm～5mmであることで、変位量を大きくうえ、さらに絶縁破壊を防止することができ、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。5mmを超えると、内部電極面積の減少に伴い、圧電体11の駆動領域が小さくなるので好ましくない。0.1mmよりも小さいと絶縁特性が急激に劣化する。

[0135] 駆動寸法を大きくして、耐久性を高めるには、0.1mm以上3mm以下が好ましく、0.5mm以上1mm以下がさらに好ましい。ここで、距離L2とは、積層体13の側面における1つの内部電極92と外部電極85との絶縁距離であり、該絶縁距離の最短距離を示している。

[0136] 次に、実施の形態4の積層型圧電素子の製法を説明する。

本製造方法では、まず、実施の形態1～3と同様にして、セラミックグリーンシートを作製し、内部電極92を形成するための導電性ペーストを作製する。

[0137] そして、この導電性ペーストを、各グリーンシートの上面にスクリーン印刷等によって1～40 $\mu$ mの厚みに印刷する。ここで、内部電極92にR状のパターンを形成するに

は、あらかじめ、スクリーン印刷の版にR状となるようにパターンを形成して印刷する。薄膜手法で電極を形成する場合は、R状となるようにパターンを形成したメタルマスクを代表とするマスクパターンをグリーンシート状に配置して電極パターンを形成した。

[0138] そして、上面に導電性ペーストが印刷されたグリーンシートを複数積層し、この積層体について所定の温度で脱バインダーを行った後、900～1200°Cで焼成することによって積層体13が作製される。

以下、実施の形態3と同様にして、本実施の形態4の積層型圧電素子及びそれを利用した積層型圧電アクチュエータを完成させる。

[0139] 本発明の積層型圧電素子はこれらに限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲であれば種々の変更は可能である。

また、上記では、積層体13の対向する側面に外部電極85を形成した例について説明したが、本発明では、例えば隣設する側面に一対の外部電極を形成してもよい。

[0140] 実施の形態5.

本発明に係る実施の形態5の積層型圧電素子は、実施の形態1の積層型圧電素子において、内部電極12を構成する金属元素の熱膨張係数を $\alpha_1$ 、外部電極15を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_2$ としたとき、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満としてある。この内部電極12の熱膨張係数と外部電極15の熱膨張係数の間に特定の関係を持たせた以外は、実施の形態5の積層型圧電素子は、実施の形態1の積層型圧電素子と同様に構成されている。

[0141] このように、内部電極12の熱膨張係数と外部電極15の熱膨張係数の間に特定の関係を持たせたのは以下のようない由による。上記熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9より小さくなると、内部電極12中金属の熱膨張係数と外部電極15中金属の熱膨張係数との差が大きくなりすぎるために、素子の連続駆動回数が増加して素子温度が上昇した場合に、内部電極12と外部電極15との接合部で密着不良が生じて、積層型圧電素子の実効変位量が小さくなったり、連続駆動中に各電極にはがれが生じたり、内部電極12と外部電極15の接合部に断線が発生する。一方、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が1以上になると、積層型圧電素子を連続駆動させた場合、内部電極12

の熱膨張に加え、圧電磁器自体が寸法変化するため、内部電極12と外部電極15の接合部にかかる負荷が大きくなる。そのため、積層型圧電素子の耐久性が落ちたり、実効変位量が小さくなるとともに、連続駆動中に上述したようなはがれや断線が発生する。

[0142] 即ち、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満とすることで、積層型圧電素子の実行変位量が小さくなる問題や、はがれた部分がスパークして破壊する問題も防止できる。併せて、装置の誤作動がなくなり、熱暴走のない優れた耐久性を有することができる。

上記に示したような本発明の積層型圧電素子において、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満とするために以下のようにすればよい。

[0143] これまで、積層型熱電素子を作製するためには、圧電体11と内部電極12を交互に積層した後、同時焼成して圧電磁器と内部電極12を焼結させて、その後、外部電極15を設けていた。この際、圧電体11と内部電極12を同時に焼結させるために、内部電極12材料として、銀単体よりも焼結温度が高く、パラジウムや白金単体よりも焼結温度が低い特徴をもつ銀とパラジウムの合金金属を内部電極11材料に用いていた。一方、外部電極15としては、圧電体11と内部電極12を同時焼成させた温度よりも低い温度で形成するために、銀にガラスフリットを添加した銀ペーストを印刷して焼成していた。しかしながら、これらの内部電極12と外部電極15の金属材料の不一致は、熱膨張の差を発生させて素子の耐久性の低下を生じていた。即ち、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )で表すと、0.9よりも小さいものであった。

[0144] これに対して、本発明では熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )を0.9以上1未満とするために、熱膨張係数の近い電極材料で内部電極12と外部電極15を構成したり、熱膨張係数の近い無機化合物を内部電極12と外部電極15に添加する必要がある。特にこれらの電極中の金属と無機化合物を均一分散させずに、内部電極12金属と外部電極15金属が接合する箇所には金属成分が偏在するようにすると、内部電極抵抗を小さくして素子温度の上昇を抑制することに効果的である。そのためには、外部電極15の焼成時において、最大焼成温度からの降温速度を遅くする方法がある。具体的には、降温速度を600°C／時以下にすればよく、好ましくは300°C／時以下にす

ればよい。そして、素子の耐久性を高くするには、好ましくは、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )を0.95以上1未満に、より好ましくは、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )を0.97以上1未満とすることで達成できる。

また、本実施の形態6の積層型圧電素子は、図15に示すように、内部電極12と外部電極15の接合部に中間層70を形成することが好ましい。

[0145] これは、例えば、スパッタリング等の薄膜作製技術で外部電極15を形成すると、中間層を形成できないので、内部電極12と外部電極15の熱膨張差に起因する応力が内部電極12と外部電極15とに接合部に集中し、積層型圧電素子を駆動した場合、内部電極12と外部電極15との接合部で破断して、破断面でスパークしたり、素子の駆動が停止しやすくなるからである。

一方、中間層70を形成するには、外部電極15を焼き付けにより形成して、内部電極12と外部電極15に含まれる金属成分を相互拡散させればよい。

[0146] 具体的には、内部電極焼成温度よりも低い温度で外部電極中に液相が形成できるように低融点ガラスフリットを添加した外部電極ペーストを焼き付ける手法である。しかし、上記手法のみでは中間層70を形成できないので、さらに、外部電極15を構成する金属の酸化物を外部電極ペーストに添加し、液相中における外部電極金属の分散を促進させればよい。これによって、外部電極15の焼結を進行させると同時に、外部電極15と接する内部電極12中に液相を介して内部電極と外部電極との接合部に中間層70を形成することができる。この際、外部電極ペーストに添加するものとして、外部電極15を構成する金属酸化物のみであっても良いが、液相を低温で形成させるために、他のガラス成分との混合、あるいはあらかじめガラスフリット成分として外部電極を構成する金属の酸化物を添加することが好ましい。

また、中間層70の形成を確認する方法は、顕微鏡によても良いが、好ましくはSEMによって確認することができる。

[0147] 尚、内部電極12を構成する金属元素の熱膨張係数を $\alpha_1$ 、外部電極15を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_2$ としたとき、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満であり、かつ内部電極12と外部電極15の接合部に中間層70を設けることで、耐久性の極めて優れた積層型圧電素子となる。

- [0148] このとき、内部電極12を構成する金属組成物の80質量%以上が外部電極15を構成する金属組成物の主成分であることにより、内部電極12中の金属部分と外部電極15中の金属部分とが相互拡散して、内部電極と外部電極との間に極めて強い密着強度を得ることができる。そのため、内部電極と外部電極との間に熱膨張の差が生じても剥離することができない。また、内部電極と外部電極との間で新たな金属間化合物が形成されることがないので、積層型圧電素子を駆動した際に応力破壊の起点となる組成不均一箇所の形成を防止することができる。これにより、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有することができる。これに対して、内部電極12の金属組成物を外部電極15の金属組成物の主成分を80質量%未満で構成すると、内部電極12と外部電極15との間で新たな金属間化合物や合金が形成され、該形成部が硬くもろくなる問題が生じる場合がある。特に積層型圧電素子は駆動により寸法が変化する素子であるから、寸法変化に伴い、外部電極15と内部電極12の接合部に応力が負荷される。この接合部に硬くもろい金属間化合物や合金が形成されると、素子の変形が伴う連続駆動中に上述したようなはがれや断線が発生する場合がある。一方、外部電極15を構成する金属組成物の主成分のみで内部電極12を構成すると、相互拡散により中間層70を形成できない。そのため、内部電極12と外部電極15の接合部に応力緩和層が形成されないので、連続駆動時に積層型圧電素子が変位した際、耐久性を有することができない。
- [0149] 尚、素子の耐久性を高くするには、好ましくは、内部電極12を構成する金属組成物の85質量%以上が外部電極15を構成する金属組成物の主成分であること、より好ましくは、90質量%以上、さらに好ましくは、95質量%とすることで達成できる。
- [0150] また、本発明の積層型圧電素子は、中間層70を内部電極12を構成する金属成分と外部電極15を構成する金属成分からなる成分で構成することが好ましい。これにより、内部電極12と外部電極15が相互拡散して極めて強い密着強度を有することができる。また、内部電極12と中間層70の間及び外部電極15と中間層70の間に、金属間化合物あるいはガラス質の形成が形成されてないので、応力破壊の基点になる硬くてもろい箇所の形成を防止できる。
- さらに、内部電極12を焼成するときの雰囲気と、外部電極15を焼成する時の雰囲

気を同一にすることができるので、焼成雰囲気変化に伴う、電極構成金属の酸化還元反応等の化学反応を防止することができる。そのため、内部電極12と外部電極15との間で密着不良が生じて連続駆動中に上述したようなはがれや断線を抑制でき、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有することができる。

[0151] ここで、中間層70にガラス質等の無機化合物が存在すると内部電極12と外部電極15との熱膨張差に起因する応力が中間層70に集中するため、金属よりも硬くてもろい無機化合物が破壊の起点となるため、素子の変形が伴う連続駆動中に上述したようなはがれや断線が発生する場合がある。

[0152] 中間層70を内部電極12を構成する金属成分と外部電極15を構成する金属成分からなる成分で構成するには、外部電極形成時に、外部電極酸化物が加わった液相を形成させて内部電極金属と外部電極金属間に金属成分を選択的に結晶成長させ、中間層70外部に液相成分を追い出して中間層70を形成させる。そのためには、外部電極焼成温度を保持する時には液相を形成し、冷却段階では中間層70内に無機化合物を残留させないことが求められるが、ガラスフリットに外部電極酸化物を添加することで、焼成冷却時に外部電極酸化物の金属成分が中間層70に取り込まれ、液相が中間層70周辺でガラス層として析出することができる。このとき、冷却速度が速いと外部電極酸化物の金属成分が中間層70に取り込まれるよりも先に、酸化物のまま中間層70内に形成されてしまうので、焼成保持温度から600°Cまでの冷却速度を500°C／時間よりも遅くすればよい。

[0153] また、本発明の積層型圧電素子は、前記中間層70の熱膨張係数を $\alpha_3$ としたとき、 $\alpha_3$ が $\alpha_1$ および $\alpha_2$ よりも大きくても小さくても素子駆動中の応力が中間層70に集中して破断する。さらに、 $\alpha_2 < \alpha_3 < \alpha_1$ であると、積層型圧電素子を連続駆動させた場合、内部電極12の熱膨張に加え、圧電磁器自体が寸法変化するため、内部電極12と外部電極15の接合部分にかかる負荷が大きくなり、耐久性が落ちたり、実効変位量が小さくなったり、連続駆動中にはがれたり断線することが発生する。そこで、 $\alpha_1 < \alpha_3 < \alpha_2$ であることにより、内部電極12と外部電極15が相互拡散して極めて強い密着強度を発生することができる上に、内部電極と外部電極との熱膨張差に起因す

る応力が中間層全体に集中するため、応力の1点集中をさけることができ、内部電極12と外部電極15との間で密着不良が生じて連続駆動中に上述したようなはがれや断線を抑制でき、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有することができる。中間層70の熱膨張係数は、SEM観察中に観察箇所の温度を計測しながら加熱して、温度と中間層70の寸法を計測することで測定できる。あるいは、同一組成の試料を別途作製して熱膨張係数を求めることもできる。

- [0154] また、本発明の積層型圧電素子は、前記中間層70の組成が内部電極12中の金属組成から外部電極15中の金属組成へと傾斜的に変化していることが好ましい。このようにすると、内部電極と外部電極の熱膨張差に起因する応力を中間層の一点に集中させることなく緩和することができる。電極はがれを防止し、内部電極と外部電極との密着強度を向上させて、耐久性をさらに優れたものにすることができます。すなわち、積層型圧電素子を連続駆動させた場合、内部電極12の熱膨張に加え、圧電磁器自体が寸法変化しても、内部電極12と中間層70、及び外部電極15と中間層70との間における応力集中を抑制でき、中間層70全体で応力を吸収することができます。これにより、内部電極12と外部電極15との間の密着不良による連続駆動中のはがれや断線を抑制でき、装置の誤作動がなくなり、さらに、熱暴走のない優れた耐久性を有することができる。そのような傾斜層を形成するためには、外部電極を素子に装着する場合、熱処理が必要である。しかしながら、その熱処理は、内部電極の金属組成と外部電極の金属組成が相互拡散してかつ均一組成になることを抑制するために、内部電極の金属組成と外部電極の金属組成での融点あるいは液相線よりも低い温度で行うことが必要である。好ましくは、融点あるいは液相線の絶対温度の50%から95%の温度、さらに好ましくは80%から95%の温度で熱処理することで、前記中間層70の組成が内部電極12中の金属組成から外部電極15中の金属組成へと傾斜的に変化させることができる。
- [0155] 以上の実施の形態5の積層型圧電素子は、上述したようにして、中間層を形成する以外は、実施の形態1等と同様にして作製することができる。
- [0156] 以下、本発明に係る実施の形態1～5における、内部電極、外部電極及び圧電体のより好ましい形態について説明する。

[0157] (内部電極)

内部電極2中の金属組成物が8ー10族金属および／または11族金属を主成分とすることが望ましい。これは、これらの金属を用いると、マイグレーションを抑制できることに加え、上記の金属組成物は高い耐熱性を有するため、焼成温度の高い圧電体1と内部電極2を同時焼成することも可能であるからである。このように、圧電体と内部電極とを同時焼成すると、接合界面を強固に結合できるだけでなく、素子が変位して内部電極に応力が加わっても、内部電極自体が伸縮して応力集中を防止するため、クラックの発生を抑制することができる。また、実施の形態2で説明したように、圧電体1と濡れ性が悪いため、圧電体1と内部電極2との界面に空隙が発生しやすくなり、それらを積層して焼成すると、比較的高い空隙を有する内部電極2を形成することができる。

[0158] さらに、内部電極2中の金属組成物が8ー10族金属の含有量をM1(質量%)、11族金属の含有量をM2(質量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足する金属組成物を主成分とすることが好ましい。これは、8ー10族金属が15質量%を超えると、内部電極2の比抵抗が大きくなり、積層型圧電素子を連続駆動させた場合、内部電極2が発熱する場合があるからである。これにより、積層圧電体素子の温度上昇を抑制でき、素子変位量を安定させることができるからである。また、内部電極2中の11族金属の圧電体1へのマイグレーションをより抑制するために、8ー10族金属が0.001質量%以上15質量%以下とすることが好ましい。また、積層型圧電素子10の耐久性を向上させるという点では、0.1質量%以上10質量%以下が好ましい。また、熱伝導に優れ、より高い耐久性を必要とする場合は0.5質量%以上10質量%以下がより好ましい。また、さらに高い耐久性を求める場合は1質量%以上8質量%以下がさらに好ましい。

[0159] ここで、11族金属が85質量%未満になると、内部電極2の比抵抗が大きくなり、積層型圧電素子10を連続駆動させた場合、内部電極2が発熱する場合があるからである。また、内部電極2中の11族金属の圧電体1へのマイグレーションを抑制するために、11族金属が85質量%以上99.999質量%以下とすることが好ましい。また、積層型圧電素子10の耐久性を向上させるという点では、90質量%以上99.9質量%

以下が好ましい。また、より高い耐久性を必要とする場合は90.5質量%以上99.5質量%以下がより好ましい。また、さらに高い耐久性を求める場合は92質量%以上98質量%以下がさらに好ましい。

上記の内部電極2中の金属成分の質量%を示す8ー10族金属、11族金属はEPMA (Electron Probe Micro Analysis) 法等の分析方法で特定できる。

[0160] さらに、本発明の内部電極2中の金属成分は、8ー10族金属がNi、Pt、Pd、Rh、Ir、Ru、Osのうち少なくとも1種以上であり、11族金属がCu、Ag、Auのうち少なくとも1種以上であることが好ましい。これは、近年における合金粉末合成技術において量産性に優れた金属組成であるからである。

さらに、内部電極2中の金属成分は、8ー10族金属がPt、Pdのうち少なくとも1種以上であり、11族金属がAg、Auのうち少なくとも1種以上であることが好ましい。これにより、耐熱性に優れ、比抵抗の小さな内部電極2を形成できる可能性がある。

[0161] さらに、内部電極2中の金属成分は、11族金属がCuであることがより好ましい。これにより、熱伝導性に優れた内部電極2を形成できる可能性があると同時に発生する内部応力を軽減できる可能性がある。

また、内部電極2中の金属成分が11族金属のCuである積層圧電体素子を用いた噴射装置では、例えば、燃料の噴射圧力が急激に上昇するような事態が生じた場合であっても噴射装置の暴走を防止できる。すなわち、燃料噴射圧力が急激に上昇して噴射装置内の素子が燃料蒸気に曝された場合、Ag電極を用いた素子では、燃料中に含まれるS(イオウ)によってAgSが形成されるため、Agが腐食して素子の駆動が停止するという問題があるが、内部電極がCuであれば、Sに対しても安定な材料であるので異常事態が生じても、駆動に問題が生じない。

さらに、内部電極2中の金属成分は、8ー10族金属がNiであることが好ましい。これにより、耐熱性および耐酸化性に優れた内部電極2を形成できる可能性がある。

[0162] また、前記内部電極に前記内部電極を構成する材質と濡れ性の悪い無機組成物を添加することが好ましい。これは、濡れ性の悪い無機組成物が内部電極2にあることにより、焼成の際に、内部電極2と濡れ性が悪いので、この無機組成物の周囲の電極部分2aがはじかれ、周囲には電極部分2aの無い部分つまり空隙20が形成される

ことになり、空隙形成の面で有利となり、その結果、変位量を向上させることができる。ここで、上記無機組成物としては、BN、TiN、ZrN等の窒化物を主成分とすることが好ましく、BNを主成分とすることがさらに好ましい。尚、無機組成物は圧電体1の表面に形成したものでも良い。

[0163] (圧電体)

また、圧電体1はペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。これは、例えば、チタン酸バリウム( $BaTiO_3$ )を代表とするペロブスカイト型圧電セラミックス材料等で形成されると、その圧電特性を示す圧電歪み定数d33が高いことから、変位量を大きくすることができ、さらに、圧電体1と内部電極2を同時に焼成することもできる。上記に示した圧電体1としては、圧電歪み定数d33が比較的高い $PbZrO_3-PbTiO_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることが好ましい。

[0164] さらに、圧電体の焼成温度は900°C以上1050°C以下であることが好ましい。これは、焼成温度が900°C以下では、焼成温度が低いため焼成が不十分となり、緻密な圧電体1を作製することが困難になる。また、焼成温度が1050°Cを超えると、焼成時の内部電極2の収縮と圧電体1の収縮のずれに起因した応力が大きくなり、積層型圧電素子10の連続駆動時にクラックが発生する可能性があるからである。

[0165] また、圧電体の焼成温度との関係する、内部電極2中の組成のずれが焼成前後で5%以下であることが好ましい。これは、内部電極2中の組成のずれが焼成前後で5%を超えると、内部電極12中の金属材料が圧電体11へのマイグレーションが多くなり、積層型圧電素子10の駆動による伸縮に対して、内部電極2が追従できなくなる可能性がある。

ここで、内部電極2中の組成のずれとは、内部電極2を構成する元素が焼成によって蒸発、または圧電体1へ拡散することにより内部電極2の組成が変わる変化率を示している。

[0166] (外部電極)

また、外部電極は、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなるのが望ましい。外部電極4が3次元網目構造をなす多孔質導電体で構成されていなければ、外部電極4はフレキシブル性を有しないため、積層型圧電アクチュエータの伸縮に追従できな

ぐなるので、外部電極4の断線や外部電極4と内部電極2の接点不良が生じる場合がある。ここで、3次元網目構造とは、外部電極4にいわゆる球形のボイドが存在している状態を意味するのではなく、外部電極4を構成する導電材粉末とガラス粉末が、比較的低温で焼き付けられている為に、焼結が進みきらずにボイドがある程度連結した状態で存在し、外部電極4を構成する導電材粉末とガラス粉末が3次元的に連結、接合した状態を示唆している。

- [0167] あるいは、外部電極4中の空隙率が30～70体積%であることが望ましい。ここで、空隙率とは、外部電極4中に占める空隙4aの比率である。これは、外部電極4中の空隙率が30体積%より小さければ、外部電極4が積層型圧電アクチュエータの伸縮によって生じる応力に耐えきれずに、外部電極4が断線する可能性がある。また、外部電極4中の空隙率が70体積%を超えると、外部電極4の抵抗値が大きくなるため、大電流を流した際に外部電極4が局所発熱を起こして断線してしまう可能性がある。
- [0168] また、外部電極4を構成するガラスの軟化点(℃)が、内部電極2を構成する導電材の融点(℃)の4／5以下であることが望ましい。これは、外部電極4を構成するガラスの軟化点が、内部電極2を構成する導電材の融点の4／5を超えると、外部電極4を構成するガラスの軟化点と内部電極2を構成する導電材の融点が同程度の温度になるため、外部電極4を焼き付ける温度が必然的に内部電極2を構成する融点に近づくので、外部電極4の焼き付けの際に、内部電極2及び外部電極4の導電材が凝集して拡散接合を妨げたり、また、焼き付け温度を外部電極4のガラス成分が軟化するのに十分な温度に設定できないため、軟化したガラスによる十分な接合強度を得ることができない場合がある。
- [0169] さらに、外部電極4の圧電体1側表層部にガラスリッチ層が形成されていることが望ましい。これは、ガラスリッチ層が存在しないと、外部電極4中のガラス成分との接合が困難になるため、外部電極4が圧電体1との強固な接合が容易でなくなる可能性がある。
- [0170] さらに、外部電極4を構成するガラスを非晶質にすることが望ましい。これは、結晶質のガラスでは、積層型圧電アクチュエータの伸縮によって生じる応力を外部電極4が吸収できないので、クラック等が発生する場合がある。

- [0171] さらに、外部電極4の厚みが圧電体1の厚みよりも薄いことが望ましい。これは、外部電極4の厚みが圧電体1の厚みよりも厚いと、外部電極4の強度が増大するため、積層体10が伸縮する際に、外部電極4と内部電極2の接合部の負荷が増大し、接点不良が生じる場合がある。
- [0172] さらに、外部電極4の外面に、金属のメッシュ若しくはメッシュ状の金属板が埋設された導電性接着剤からなる導電性補助部材7を設けることが望ましい。外部電極4の外面に導電性補助部材7を設けないと、積層型圧電素子10に大電流を流して駆動する際に、外部電極4が大電流に耐えきれずに局所発熱してしまい、断線する可能性がある。
- [0173] また、外部電極4の外面にメッシュ若しくはメッシュ状の金属板を使用しないと、積層型圧電素子10の伸縮による応力が外部電極4に直接作用することにより、駆動中の疲労によって外部電極4が積層型圧電素子10の側面から剥離しやすくなる可能性がある。
- 金属のメッシュとは金属線を編み込んだものであり、メッシュ状の金属板とは、金属板に孔を形成してメッシュ状にしたものをいう。
- [0174] さらに、導電性接着剤が導電性粒子を分散させたポリイミド樹脂からなることが望ましい。これは、ポリイミド樹脂を使用することにより、積層型圧電素子10を高温下で駆動させる際にも、比較的高い耐熱性を有するポリイミド樹脂を使用することによって、導電性接着剤が高い接着強度を維持しやすい。
- さらに、導電性粒子が銀粉末であることが望ましい。これは、導電性粒子に比較的抵抗値の低い銀粉末を使用することによって、導電性接着剤における局所発熱を抑制しやすい。
- [0175] 即ち、比抵抗の低い銀粉末を、耐熱性の高いポリイミド樹脂に分散させることにより、高温での使用に際しても、抵抗値が低く且つ高い接着強度を維持した導電性補助部材7を形成することができる。さらに望ましくは、前記導電性粒子はフレーク状や針状などの非球形の粒子であることが望ましい。これは、導電性粒子の形状をフレーク状や針状などの非球形の粒子とすることにより、該導電性粒子間の絡み合いを強固にすことができ、該導電性接着剤のせん断強度をより高めることができるためである

。

[0176] また、本発明の積層型圧電素子10は单板あるいは積層数が1またはそれ以上からなることが好ましい。これにより、素子に加えられた圧力を電圧に変換することも、素子に電圧を加えることで素子を変位させることもできるため、素子駆動中に予期せぬ応力を加えられたとしても、応力を分散して電圧変換することで、応力緩和させることができるので、耐久性に優れた高信頼性の圧電アクチュエータを提供することができる。

[0177] また、本発明の積層型圧電素子10の側面に端部が露出する内部電極2と端部が露出しない内部電極2とが交互に構成されており、前記端部が露出していない内部電極2と外部電極4間の圧電体1部分に溝3が形成されており、この溝内に、圧電体1よりもヤング率の低い絶縁体が形成されていることが好ましい。これにより、このような積層型圧電素子10では、駆動中の変位によって生じる応力を緩和することができることから、連続駆動させても、内部電極2の発熱を抑制することができる。

[0178] 実施の形態6.

図16は、本発明に係る実施の形態6の噴射装置を示すもので、収納容器31の一端には噴射孔33が設けられ、また収納容器31内には、噴射孔33を開閉することができるニードルバルブ35が収容されている。

[0179] 噴射孔33には燃料通路37が連通可能に設けられ、この燃料通路37は外部の燃料供給源に連結され、燃料通路37に常時一定の高圧で燃料が供給されている。従って、ニードルバルブ35が噴射孔33を開放すると、燃料通路37に供給されていた燃料が一定の高圧で内燃機関の図示しない燃料室内に噴出されるように形成されている。

[0180] また、ニードルバルブ35の上端部は直径が大きくなっている、収納容器31に形成されたシリンダ39と摺動可能なピストン41となっている。そして、収納容器31内には、上記した圧電アクチュエータ43が収納されている。

[0181] このような噴射装置では、圧電アクチュエータ43が電圧を印加されて伸長すると、ピストン41が押圧され、ニードルバルブ35が噴射孔33を閉塞し、燃料の供給が停止される。また、電圧の印加が停止されると圧電アクチュエータ43が収縮し、皿バネ45

がピストン41を押し返し、噴射孔33が燃料通路37と連通して燃料の噴射が行われるようになっている。

[0182] 以上、本発明に係る実施の形態の積層型圧電素子および噴射装置について説明したが、本発明は上記実施の形態に限定されるものではなく、例えば、自動車エンジンの燃料噴射装置、インクジェット等の液体噴射装置、光学装置等の精密位置決め装置や振動防止装置等に搭載される駆動素子、または、燃焼圧センサ、ノックセンサ、加速度センサ、荷重センサ、超音波センサ、感圧センサ、ヨーレートセンサ等に搭載されるセンサ素子、ならびに圧電ジャイロ、圧電スイッチ、圧電トランス、圧電ブレーカー等に搭載される回路素子以外であっても、圧電特性を用いた素子であれば、適用できることは言うまでもない。

### 実施例

[0183] 実施例1.

実施例1として、本発明に係る実施の形態1の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。

[0184] まず、平均粒径が $0.4\text{ }\mu\text{m}$ のチタン酸ジルコン酸鉛( $\text{PbZrO}_3-\text{PbTiO}_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み $150\text{ }\mu\text{m}$ の圧電体11になるセラミックグリーンシートを作製した。

[0185] このセラミックグリーンシートの片面に、スクリーン印刷法により、所定の組成比の銀-パラジウム合金に酸化銀とバインダーを加えた導電性ペーストを、 $3\text{ }\mu\text{m}$ の厚みに形成した。この導電性ペーストが形成されたシートを300枚積層し、焼成した。焼成は、 $800^\circ\text{C}$ で保持した後に、 $1000^\circ\text{C}$ で焼成した。

[0186] その後、ダイシング装置により積層体の側面の内部電極の端部に一層おきに深さ $50\text{ }\mu\text{m}$ 、幅 $50\text{ }\mu\text{m}$ の溝を形成した。

[0187] 次に、平均粒径 $2\text{ }\mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末を90体積%と、残部が平均粒径 $2\text{ }\mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^\circ\text{C}$ の非晶質のガラス粉末10体積%との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計重量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製した。このようにして作製した銀

ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。このシートの生密度をアルキメデス法にて測定したところ、 $6.5\text{g/cm}^3$ であった。

- [0188] そして、前記銀ガラスペーストのシートを積層体13の外部電極15面に転写し、 $650^\circ\text{C}$ で30分焼き付けを行い、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極15を形成した。なお、この時の外部電極15の空隙率は、外部電極15の断面写真の画像解析装置を用いて測定したところ40%であった。
- [0189] その後、外部電極15にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極15にリード線を介して $3\text{kV/mm}$ の直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図1に示すような積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータを作製した。
- [0190] 得られた積層型圧電素子に200Vの直流電圧を印加した結果、積層方向に表1に示す変位量が得られた。
- [0191] 次に、作製した表1の積層型圧電素子を、 $3\text{mm} \times 4\text{mm} \times 36\text{mm}$ に加工して、JIS R1601の4点曲げにて、曲げ強さを測定した。この試料片は、内部電極12の電極面が試験片の長手方向に略垂直になるようになっている。この試料片に、長手方向に略垂直方向から荷重して、曲げ強さを測定した。この試験において、試験片が内部電極12と圧電体11の界面で破壊した時、圧電体と内部電極との間の接合強度が圧電体の強度よりも大きいことから、この時の値を圧電体と内部電極との間の接合強度とした。一方、試験片が圧電体11の箇所で破壊した時、圧電体の強度が圧電体と内部電極との間の接合強度よりも大きいことから、この値を圧電体の強度とした。
- [0192] 比較のために、圧電体を $3\text{mm} \times 4\text{mm} \times 36\text{mm}$ に加工して、JIS R1601の4点曲げにて、曲げ強さを測定した結果も記載した。
- [0193] 表1

N o .	試料片	無機組成物 添加量(体積 %)	破壊箇 所	接合強 度	曲げ強さ (M P a)	変位量 ( $\mu$ m)
* 1	素子	7 5 . 0	圧電体	強	1 0 4	8
2	素子	5 0 . 0	境界	弱	7 0	4 2
3	素子	4 0 . 0	境界	弱	5 0	4 9
4	素子	3 0 . 0	境界	弱	4 0	5 2
5	素子	2 0 . 0	境界	弱	3 0	5 4
6	素子	1 5 . 0	境界	弱	2 5	5 5
7	素子	1 0 . 0	境界	弱	2 0	5 6
8	素子	5 . 0	境界	弱	1 5	5 7
9	素子	1 . 0	境界	弱	1 0	5 8
1 0	素子	0 . 0	境界	弱	1 0	5 8
* 1 1	圧電体	—	圧電体	—	1 0 5	—

\*印は、本発明の範囲外であることを示す。

[0194] 表1中、素子は積層型圧電素子のことである。また、破壊箇所が圧電体となっている部分は圧電体のみで破壊したことを示し、境界となっている部分は圧電体と内部電極との境界で破壊したことを示している。

また、無機組成物添加量は、内部電極中における無機組成物添加量を体積%で示したものである。

さらに、接合強度の欄は、圧電体の強度より、圧電体と内部電極の間の接合強度が強いか弱いかにより表示し、変位量とは積層型圧電素子の変位量である。

[0195] 表1より、圧電体11の強度より圧電体11と内部電極12との間の接合強度が強い場合には(試料No. 1)、積層型圧電素子の変位量を充分大きくすることができないが、圧電体の強度より圧電体と内部電極との間の接合強度が弱い場合には(試料No. 2～7)、積層型圧電素子の変位量を充分大きくできることが確認できる。

[0196] 実施例2.

実施例2として、本発明に係る実施の形態1の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを作製して評価した。

この実施例2の積層型圧電素子は、実施例1とは内部電極12の材料組成が異なっている。この実施例2の積層型圧電素子を、内部電極12の材料組成以外は実施例1と同様に作製して実施例1と同様の方法で評価した。

[0197] このように評価した曲げ強さとの関係を表2に示す。なお、各試料の変位量の変化

率も併せて測定した。変化率としては、各試料の積層型圧電素子が駆動回数 $1 \times 10^9$ 回に達した時の変位量( $\mu\text{m}$ )と、連続駆動を開始する前の積層型圧電素子初期状態の変位量( $\mu\text{m}$ )とを比較して、変位量と積層型圧電素子の劣化の度合いを調べたものである。結果を表2に示す。

[0198] 表2

N o .	P d (重量%)	P t (重量%)	A g (重量%)	その他の金属 (重量%)	変位量 変化率 (%)
1	0	0	1 0 0	0	破壊
2	0. 0 0 1	0	9 9. 9 9 9	0	0. 7
3	0. 0 1	0	9 9. 9 9	0	0. 7
4	0. 1	0	9 9. 9	0	0. 4
5	0. 5	0	9 9. 5	0	0. 2
6	1	0	9 9	0	0. 2
7	2	0	9 8	0	0
8	4	1	9 5	0	0
9	5	0	9 5	0	0
1 0	8	0	9 2	0	0
1 1	9	0	9 1	0	0. 2
1 2	9. 5	0	9 0. 5	0	0. 2
1 3	1 0	0	9 0	0	0. 4
1 4	1 5	0	8 5	0	0. 7
1 5	2 0	0	8 0	0	0. 9
1 6	3 0	0	7 0	0	0. 9
1 7	0	0	0	C u 1 0 0 %	0. 2
1 8	0. 1	0	0	C u 9 9. 9 %	0
1 9	0		0	N i 1 0 0 %	0. 4

(1) Pd, Pt, Ag, その他の金属は、内部電極金属中における含有量を重量%で示している。

(2) 変化量変化率は、初期状態に対する連続駆動後の変化量の変化を示す。

[0199] 表2より、試料No. 1の内部電極12を銀100%にした場合は、シルバーマイグレーションにより積層型圧電素子は破損して連続駆動が不可能となった。また、試料No. 15、16は内部電極12中の金属組成物において8~10族金属の含有量が15重量

%を超えており、また、11族金属の含有量が85重量%未満であるため、内部電極12の硬度が大きいことで、積層型圧電アクチュエータの耐久性が低下することがわかる。

[0200] これに対して、No. 2～14は、内部電極12中の金属組成物が8～10属金属の含有量をM1質量%、11属金属の含有量をM2質量%としたとき、 $0 \leq M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 \leq 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ 質量%を満足する金属組成物を主成分とするために、内部電極12の硬度を小さくすることができるとともに、内部電極12の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極12で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できることがわかる。

[0201] No. 17～19も内部電極の硬度を小さくすることができるとともに、内部電極12の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極12で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できることがわかる。

[0202] 実施例3.

実施例3では、本発明に係る実施の形態2の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製して評価した。

ここでは、まず、チタン酸ジルコン酸鉛( $PbZrO_3 - PbTiO_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み $150 \mu m$ の圧電体1になるセラミックグリーンシートを作製した。

[0203] このセラミックグリーンシートの片面に、任意の組成比で形成された銀一パラジウム合金にAgとバインダーを加えた導電性ペーストをスクリーン印刷法により $4 \mu m$ の厚みに印刷した。これらシートを300枚積層体用として用意した。これとは別に保護層になるグリーンシートを用意し、これらを下から保護層30枚、積層体300枚、保護層30枚となるように積層し、プレスした後、脱脂をし、Agの融点以上で一旦温度を保持した後、 $1000^{\circ}C$ で最終焼成した。また、この他にもAgにバインダーを加えた導電性ペーストにBNを添加し、同様の工程を経ることにより、比較的空隙20の割合が大きい内部電極2を得た。更に、Cuにバインダーを加えた導電性ペースト、Niにバインダーを加えた導電性ペーストも同様に、スクリーン印刷法により $4 \mu m$ の厚みに印刷した。これらシートを300枚積層体用として用意した。これとは別に保護層になるグリーンシ

ートを用意し、これらを下から保護層30枚、積層体300枚、保護層30枚となるように積層し、プレスした後、脱脂をし、それぞれの導電性ペーストが含有する金属の融点以上で一旦温度を保持した後、さらに昇温して最終焼成した。

その後、ダイシング装置により積層体の側面の内部電極2の端部に一層おきに深さ $50\mu\text{m}$ 、幅 $50\mu\text{m}$ の溝を形成した。

[0204] 次に、平均粒径 $2\mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末を90体積%と、残部が平均粒径 $2\mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^\circ\text{C}$ の非晶質のガラス粉末10体積%との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計質量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製した。このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。このシートの生密度をアルキメデス法にて測定したところ、 $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ であった。

[0205] そして、銀ガラスペーストのシートを積層体の外部電極面に転写し、 $650^\circ\text{C}$ で30分焼き付けを行い、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極4を形成した。なお、この時の外部電極4の空隙率は、外部電極4の断面写真の画像解析装置を用いて測定したところ40%であった。

[0206] その後、外部電極4にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極にリード線を介して $3\text{kV}/\text{mm}$ の直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図2に示すような積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータを作製した。

得られた積層型圧電素子に $170\text{V}$ の直流電圧を印加した結果、表3に示すような変位量が得られた。さらに、この積層型圧電素子に室温で $0\sim+170\text{V}$ の交流電圧を $150\text{Hz}$ の周波数にて印加し駆動試験を行った。

[0207] そして、この積層型圧電素子が駆動回数 $1\times 10^9$ 回まで連続のテストを行って、その時点で積層型圧電素子に $170\text{V}$ の直流電圧を印加し、変位量を測定し、駆動試験前後での変位量の変化を算出した。駆動試験前後での変位量の変化は、駆動試験前後での変位の差の絶対値を駆動試験前の変位量で除して100倍したものとした。

[0208] 尚、空隙率、空隙の最大幅ならびに角度は、以下のようにして測定した。

空隙率は積層型圧電素子を積層方向に切断した面で測定した。その切断面において、内部電極2に存在する空隙20の面積を測定し、その空隙20の面積の総和を内部電極2の面積(空隙も含む)で除した値を100倍したものである。測定は任意の5箇所以上で行いその平均値を空隙率とした。また、最大幅は、積層型圧電素子10の積層方向の断面において、内部電極2の断面に存在する空隙20の大きさを電極に平行な線を引きその線上の長さを測定し、測定値で最大の値を最大幅とした。測定は任意の10箇所で行いすべての結果から最も大きい物を最大幅とした。最後に、内部電極2における電極部分2aと空隙20との界面が圧電体1に接する部分を起点とし、該起点から電極部分2aへの接線と圧電体1とのなす角度24の測定は、積層型圧電素子10の積層方向の断面において、任意の10箇所で、任意の10個の角度を測定し、その平均値を計算し、代表値として示した。結果を表3に示す。

[0209] 表3

No. ・	空隙 率(%)	空隙の 最大幅 ( $\mu$ m)	角度 (度)	内部電極の主成分	初期変 位量 ( $\mu$ m)	変化 率(%)
*1	4	1	40	9 5 A g - 5 P d	43	1.1
2	5	16	50	9 5 A g - 5 P d	48	0.8
3	7	17	80	9 5 A g - 5 P d	50	0.5
4	10	18	80	9 5 A g - 5 P d	53	0.3
5	29	19	80	9 5 A g - 5 P d	57	0.1
6	48	20	80	9 5 A g - 5 P d	57	0
7	60	22	80	9 5 A g - 5 P d	53	0.1
8	70	23	80	9 5 A g - 5 P d	50	0.4
*9	80	43	80	9 5 A g - 5 P d	43	1.0
10	30	1	80	9 5 A g - 5 P d	50	0.6
11	30	2	80	9 5 A g - 5 P d	55	0.4
12	31	3	80	9 5 A g - 5 P d	57	0.3
13	32	5	80	9 5 A g - 5 P d	57	0.1
14	31	11	80	9 5 A g - 5 P d	57	0.1
15	31	20	80	9 5 A g - 5 P d	57	0
16	32	29	80	9 5 A g - 5 P d	57	0
17	30	52	80	9 5 A g - 5 P d	55	0.3
18	31	100	80	9 5 A g - 5 P d	52	0.5
19	32	300	80	9 5 A g - 5 P d	52	0.5
20	29	20	50	9 5 A g - 5 P d	48	0.7
21	30	21	60	9 5 A g - 5 P d	54	0.5
22	30	22	70	9 5 A g - 5 P d	55	0.2
23	32	20	80	9 5 A g - 5 P d	57	0
24	30	22	90	9 5 A g - 5 P d	57	0.1
25	31	20	120	9 5 A g - 5 P d	55	0.2
26	30	21	150	9 5 A g - 5 P d	53	0.4
27	32	20	80	9 9 . 9 A g - 0 . 1 P d	55	0.3
28	30	19	80	9 9 . 5 A g - 0 . 5 P d	57	0.1
29	29	20	80	9 9 A g - 1 P d	57	0
30	30	22	80	9 5 A g - 5 P d	57	0
31	32	21	80	9 2 A g - 8 P d	57	0
32	30	22	80	9 0 A g - 1 0 P d	55	0.1
33	31	20	80	8 5 A g - 1 5 P d	55	0.2
34	32	21	80	8 0 A g - 2 0 P d	53	0.4
35	30	20	80	7 0 A g - 3 0 p d	52	0.5
36	29	22	80	6 0 A g - 4 0 P d	52	0.5
37	32	20	80	1 0 0 C u	56	0.1
38	30	21	80	1 0 0 N i	55	0.1

(1)角度欄の角度は、内部電極への接線と圧電体のなす角度を表している。

(2)変化率は、駆動試験前後における変位量の変化率を示している。

- [0210] 表3より、比較例である試料No. 1は、内部電極2の空隙率が5%未満であったため、内部電極2が圧電体1を拘束する力が大きくなつたため、初期の変位量が著しく小さくなるとともに、連続駆動試験前後での変位量の変化率が1. 1%と耐久性も低下した。また、試料No. 9は、内部電極2の空隙率が70%を超えたため、圧電体1に所望の電圧を印加できず、初期の変位量が低下したとともに、連続駆動させると、内部電極2の強度低下に伴い、耐久性も低下した。
- [0211] これらに対して、内部電極2に5～70%の空隙20を有する本発明の試料No. 2～8、10～38は、初期の変位量が48  $\mu\text{m}$ 以上で比較例No. 1、9に比べて変位量が大きく、積層型圧電素子10として優れていることがわかつた。また、本発明の試料No. 2～8、10～38は、連続駆動試験前後の変位量の変化率が0. 8%以下で比較例No. 1、9に比べて小さく、耐久性の面でも本発明品が優れていることがわかつた。
- [0212] 特に、空隙20の最大幅が1  $\mu\text{m}$ 以上、または内部電極2における電極部分2aと空隙20との界面が圧電体1に接する部分を起点とし、該起点から電極部分2aへの接線と圧電体1とのなす角度24が60度以上である試料No. 3～8、10～19、21～38は、初期の変位量が50  $\mu\text{m}$ 以上と大きく、また、連続駆動試験前後の変化率が0. 6%以下と小さく、積層型圧電素子として変位特性と耐久性においても優れることがわかつた。
- [0213] 実施例4.
- 実施例4では、本発明に係る実施の形態3の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。
- まず、平均粒径が0. 4  $\mu\text{m}$ のチタン酸ジルコニア酸鉛( $\text{PbZrO}_3-\text{PbTiO}_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み150  $\mu\text{m}$ の圧電体11になるセラミックグリーンシートを作製した。
- [0214] このセラミックグリーンシートの片面に、銀-パラジウム合金(銀95質量%−パラジウム5重量%)にバインダーを加えた導電性ペーストをスクリーン印刷法により3  $\mu\text{m}$ の

厚みに形成したシートを300枚積層し、焼成した。焼成は、800°Cで保持した後に、1000°Cで焼成した。

ここで、内部電極82の形状は、図8、図9、図17、図18、図19に示す形状になるようにそれぞれ印刷した。

- [0215] 図8A～Cは、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が非線対称形でかつ点対称形であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している内部電極パターンを示す図である。ここで、図8A、図8Bは異なる極性を有するそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図8Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを示す図である。
- [0216] 図9A～Cは、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が非線対称形でかつ点対称形であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している内部電極パターンで、さらに内部電極パターンにR面が形成されていることを示す図である。ここで、図9A、図9Bは異なる極性を有するそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図9Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを示す図である。
- [0217] 図17A～Cは、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が線対称形でかつ点対称形であり、積層型圧電素子の一部の素子側面では片方の内部電極しか露出していない内部電極パターンを示す図である。ここで、図17A、図17Bは異なる極性を有するそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図17Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを示す平面図である。
- [0218] 図18A～Cは、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が線対称形でかつ点対称形であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している積層型圧電素子の内部電極パターンを示す図である。ここで、図18A、図18Bは異なる極性のそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図18Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを示す図である。

- [0219] 図19A～Cは、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が線対称形でかつ非点対称形であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している積層型圧電素子の内部電極パターンを示す図である。ここで、図19A、図19Bは異なる極性のそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図19Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aを示す図である。
- [0220] 次に、平均粒径 $2\mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末と、残部が平均粒径 $2\mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^\circ\text{C}$ の非晶質のガラス粉末との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計質量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製し、このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。
- そして、前記銀ガラスペーストのシートを積層体80の外部電極85面に転写して積層し、 $700^\circ\text{C}$ で30分焼き付けを行い、外部電極85を形成した。
- [0221] その後、外部電極85にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極85にリード線を介して $3\text{kV}/\text{mm}$ の直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図5Aに示すような積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータを作製した。
- 得られた積層型圧電素子に $170\text{V}$ の直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に $45\mu\text{m}$ の変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で $0\sim+170\text{V}$ の交流電圧を $150\text{Hz}$ の周波数で印加して、 $1\times 10^9$ 回まで連続駆動した試験を行った。結果は表4に示すとおりである。
- [0222] 表4

N o. . .	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K
1	図 8 A 図 8 B	図 8 C	×	○	○	×	50. 0	49. 9	—	—	—
2	図 9 A 図 9 B	図 9 C	×	○	○	○	55. 0	55. 0	—	—	—
* 3	図 1 7 A 図 1 7 B	図 1 7 C	○	○	×	×	45. 0	44. 0	発生	発生	発生
* 4	図 1 8 A 図 1 8 B	図 1 8 C	○	○	○	×	50. 0	49. 0	発生	発生	発生
* 5	図 1 9 A 図 1 9 B	図 1 9 C	○	×	○	×	45. 0	42. 0	発生	発生	発生

\*印は、本発明の範囲外のものである。

[0223] 尚、表4におけるアルファベットの文字で表示した欄は、以下のことを示す。

A: 内部電極の構成、

B: 異なる極性の内部電極同士が重なる部分の形状、

C: 異なる極性の内部電極同士が重なる部分の形状が線対称、

D: 異なる極性の内部電極同士が重なる部分の形状が点対称、

E: 異なる極性の内部電極が全ての素子側面で露出、

F: 内部電極パターンにC面またはR面、

G: 初期状態の変位量(μm)、

H: 連続駆動後(1×109回)の変位量(μm)、

I: 連続駆動後(1×109回)積層部分にはがれ、

J: 高調波成分のノイズ発生、

K: 1kHz以上でうなり音発生。

[0224] この表4から、比較例である試料番号3、4、5は、内部電極82のパターンが、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が、線対称であるため、積層型圧電アクチュエータを連続駆動させると、圧電変位の大きくなる部分が線対称の中心線となり、該中心線上において変位が著しく大きくなるため、その変位が素子側面の圧電体11と内部電極82の積層界面まで伝搬し、該積層界面にかかる負荷が増大して剥離が生じるとともに、うなり音やノイズ発生が生じた。

[0225] これらに対して、本発明の実施例である試料番号1、2では、内部電極82のパター

ンが、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分82aの形状が、非線対称であるため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後も、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効変位量を有し、また、誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

特に試料番号2は、内部電極パターンにR面があるため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後も、素子変位量がほとんど変化せず、極めて耐久性に優れていた。

[0226] 実施例5.

実施例5では、実施例4の試料No. 2の積層型圧電アクチュエータの内部電極82の材料組成を変化させて、各試料の変位量の変化率を測定した。ここで、変位量の変化率とは、各試料の積層型圧電素子が駆動回数 $1 \times 10^9$ 回に達した時の変位量( $\mu m$ )と、連続駆動を開始する前の積層型圧電素子初期状態の変位量( $\mu m$ )とを比較したものである。結果を表5に示す。

[0227] 表5

No	Pd (質量%)	Ag (質量%)	Cu (質量%)	Ni (質量%)	変位量変化率 (%)
1	0	100	0	0	マイグレーションで破損
2	0.001	99.999	0	0	0.7
3	0.01	99.99	0	0	0.7
4	0.1	99.9	0	0	0.4
5	0.5	99.5	0	0	0.2
6	1	99	0	0	0.2
7	2	98	0	0	0
8	4	95	1	0	0
9	5	95	0	0	0
10	8	92	0	0	0
11	9	91	0	0	0.2
12	9.5	90.5	0	0	0.2
13	10	90	0	0	0.4
14	15	85	0	0	0.7
15	0	0	100	0	0.2
16	0	0	99.9	0.1	0
17	0	0	0	100	0.4
18	20	80	0	0	0.9
19	30	70	0	0	0.9

[0228] Pd, Ag, Cu, Ni(質量%)は、内部電極金属中に含まれる各元素の質量%で表しており、変位量変化率(%)は、初期状態に対する連続駆動後の変位量の変化率を示している。

[0229] 表5より、試料No. 1の内部電極82を銀100%にした場合は、シルバーマイグレーションにより積層型圧電素子は破損して連続駆動が不可能となった。また、試料No. 18は内部電極82中の金属組成物において8~10族金属の含有量が15質量%を超えており、また、11族金属の含有量が85質量%未満であるため、内部電極82の比抵抗が大きいことで積層型圧電素子を連続駆動させた際発熱して、積層型圧電ア

クチュエータの変位量が低下することがわかる。

[0230] これに対して、試料No. 2～14は、内部電極82中の金属組成物が8～10属金属の含有量をM1質量%、1b属金属の含有量をM2質量%としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ 質量%を満足する金属組成物を主成分とするために、内部電極82の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極82で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できることがわかる。

試料No. 15～17も内部電極82の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極82で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できることがわかる。

[0231] 実施例6.

実施例6では、本発明に係る実施の形態4の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。

まず、平均粒径が $0.4 \mu\text{m}$ のチタン酸ジルコン酸鉛( $\text{PbZrO}_3-\text{PbTiO}_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み $150 \mu\text{m}$ の圧電体11になるセラミックグリーンシートを作製した。

[0232] このセラミックグリーンシートの片面に、銀一パラジウム合金(銀95質量%一パラジウム5重量%)にバインダーを加えた導電性ペーストをスクリーン印刷法により $3 \mu\text{m}$ の厚みで、図13、図14、図20、図21、図22、図23に示す形状で印刷して形成したシートをそれぞれ300枚積層し、焼成した。焼成は、 $800^\circ\text{C}$ で保持した後に、 $1000^\circ\text{C}$ で焼成した。

[0233] 図13A～Cは、内部電極92と絶縁領域96との境界がR状であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している内部電極パターンを示す図である。ここで、図13A、図13Bは異なる極性を有するそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図13Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す図である。

[0234] 図14A～Cは、内部電極92と絶縁領域96との境界がR状であり、積層型圧電素子

の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している内部電極パターンで、さらに圧電体11にR面が形成されていることを示す図である。ここで、図14A、図14Bは異なる極性を有するそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図14Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す図である。

- [0235] 図20A～Cは、内部電極92と絶縁領域96との境界が直線状であり、積層型圧電素子の一部の素子側面では片方の内部電極しか露出していない内部電極パターンを示す図である。ここで、図20A、図20Bは異なる極性を有するそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図20Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す平面図である。
- [0236] 図21A～Cは、内部電極92と絶縁領域96との境界が直線状であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している積層型圧電素子の内部電極パターンを示す図である。ここで、図21A、図21Bは異なる極性のそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図21Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す図である。
- [0237] 図22A～Cは、内部電極92と絶縁領域96との境界が直角状であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している積層型圧電素子の内部電極パターンを示す図である。ここで、図22A、図22Bは異なる極性のそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図22Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す図である。
- [0238] 図23A～Cは、内部電極92と絶縁領域96との境界が直線状であり、異なる極性の内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aの形状が非点対称形であり、積層型圧電素子の全ての素子側面で異なる極性の内部電極が露出している積層型圧電素子の内部電極パターンを示す図である。ここで、図23A、図23Bは異なる極性のそれぞれの内部電極パターンを示す平面図で、図23Cは異なる極性を有する内部電極同士が圧電体11を介して重なる部分92aを示す図である。
- [0239] 次に、平均粒径 $2\mu\text{m}$ のフレーク状の銀粉末と、残部が平均粒径 $2\mu\text{m}$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^\circ\text{C}$ の非晶質のガラス粉末との混合物に、バインダーを銀

粉末とガラス粉末の合計質量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製し、このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。

そして、前記銀ガラスペーストのシートを積層体13の外部電極85面に転写して積層し、700°Cで30分焼き付けを行い、外部電極85を形成した。

[0240] その後、外部電極85にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極85にリード線を介して3kV/mmの直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図10に示すような積層型圧電素子を用いた積層型圧電アクチュエータを作製した。

得られた積層型圧電素子に170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に45 μmの変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で0～+170Vの交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動した試験を行った。結果は表6に示すとおりである。

[0241] 表6

N <sub>o</sub>	A	B	C	D	E	F	G	H	I
1	図13	○	図1 3(c) )	○	○	52.0	51.9	—	—
2	図14	○	図1 4(c) )	○	○	56.0	56.0	—	—
*3	図20	×	図2 0(c) )	○	×	45.0	44.0	発生	発生
*4	図21	×	図2 1(c) )	○	○	50.0	49.0	発生	発生
*5	図22	×	図2 2(c) )	○	○	51.0	49.0	発生	発生
*5	図23	×	図2 3(c) )	×	○	45.0	42.0	発生	発生

[0242] 尚、表4におけるアルファベットの文字で表示した欄は、以下のことを示す。

- A: 内部電極の構成、
- B: 内部電極と絶縁領域との境界にR面である(○)か否か(×)、
- C: 異なる極性の内部電極同士が重なる部分の形状
- D: 異なる極性の内部電極同士が重なる部分の形状が点対称(○)か否か(×)、
- E: 異なる極性の内部電極が全ての素子側面で露出している(○)か否(×)か、
- F: 初期状態の変位量( $\mu\text{ m}$ )、
- G: 連続駆動後( $1 \times 10^9$ 回)の変位量( $\mu\text{ m}$ )、
- H: 連続駆動後( $1 \times 10^9$ 回)積層部分にクラックが発生したか否か、
- I: 高調波成分のノイズが発生したか否か。

[0243] この表6から、比較例である試料番号3、4、5、6は、内部電極92と絶縁領域96との境界がR状でないため、積層型圧電アクチュエータを連続駆動させると、圧電変位の大きくなる部分と圧電変位しない部分の境界に応力が集中して、該積層界面にかかる負荷が増大して圧電体11の絶縁領域96にクラックが生じるとともに、駆動中にノイズが発生した。

[0244] これらに対して、本発明の実施例である試料番号1、2では、内部電極92と絶縁領域96との境界がR状であるため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後も、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効変位量を有し、また、誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

特に試料番号2は、圧電体11にR面があるため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後も、素子変位量がほとんど変化せず、極めて耐久性に優れていた。

[0245] 実施例7.

実施例6の試料No. 2の積層型圧電アクチュエータの内部電極92の材料組成を変化させて、各試料の変位量の変化率を測定した。ここで、変位量の変化率とは、各試料の積層型圧電素子が駆動回数 $1 \times 10^9$ 回に達した時の変位量( $\mu\text{ m}$ )と、連続駆動を開始する前の積層型圧電素子初期状態の変位量( $\mu\text{ m}$ )とを比較したものである。結果を表7に示す。

[0246] 表7

No	Pd (質量%)	Ag (質量%)	Cu (質量%)	Ni (質量%)	変位量変化率 (%)
1	0	100	0	0	破損
2	0.001	99.999	0	0	0.7
3	0.01	99.99	0	0	0.7
4	0.1	99.9	0	0	0.4
5	0.5	99.5	0	0	0.2
6	1	99	0	0	0.2
7	2	98	0	0	0
8	4	95	1	0	0
9	5	95	0	0	0
10	8	92	0	0	0
11	9	91	0	0	0.2
12	9.5	90.5	0	0	0.2
13	10	90	0	0	0.4
14	15	85	0	0	0.7
15	0	0	100	0	0.2
16	0	0	99.9	0.1	0
17	0	0	0	100	0.4
18	20	80	0	0	0.9
19	30	70	0	0	0.9

表7において、Pd、Ag、Cu、Niと表記した欄には、内部電極金属中における各金属の質量%を示している。また、変位量変化率と表記した欄には、初期状態に対する連続駆動後の変位量の変化率(%)を示し、試料1の破壊はマイグレーションで破損したものである。

[0247] 表7より、試料No. 1の内部電極92を銀100%にした場合は、シルバーマイグレーションにより積層型圧電素子の一部に破損が生じた。また、試料No. 18は内部電極92中の金属組成物において8ー10族金属の含有量が15質量%を超えており、また、11族金属の含有量が85質量%未満であるため、内部電極92の比抵抗が大きいこ

とで積層型圧電素子を連続駆動させた際発熱して、積層型圧電アクチュエータの変位量が低下することがわかる。

[0248] これに対して、試料No. 2～14は、内部電極92中の金属組成物が8～10属金属の含有量をM1質量%、1b属金属の含有量をM2質量%としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ 質量%を満足する金属組成物を主成分とするために、内部電極92の比抵抗を小さくして発熱を抑制できたとともに、伸縮性に富んだ内部電極92とすることことができたので、クラックが発生することなく素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できた。

試料No. 15～17も内部電極92の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極92で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できることがわかる。

[0249] 実施例8.

実施例8では、本発明に係る実施の形態5の積層型圧電素子からなる積層型圧電アクチュエータを以下のようにして作製した。

まず、チタン酸ジルコン酸鉛( $PbZrO_3 - PbTiO_3$ )を主成分とする圧電セラミックの仮焼粉末、バインダー、及び可塑剤を混合したスラリーを作製し、ドクターブレード法で厚み $150 \mu m$ の圧電体11になるセラミックグリーンシートを作製した。

[0250] このセラミックグリーンシートの片面に、任意の組成比で形成された銀一パラジウム合金にバインダーを加えた導電性ペーストが、スクリーン印刷法により $3 \mu m$ の厚みに形成されたシートを300枚積層し、 $1000^{\circ}C$ で焼成した。

次に、ダイシング装置により柱状積層体の側面の内部電極の端部に一層おきに深さ $50 \mu m$ 、幅 $50 \mu m$ の溝を形成した。

[0251] 次に、平均粒径 $2 \mu m$ のフレーク状の銀粉末を90体積%と、残部が平均粒径 $2 \mu m$ のケイ素を主成分とする軟化点が $640^{\circ}C$ の非晶質のガラス粉末10体積%との混合物に、バインダーを銀粉末とガラス粉末の合計質量100質量部に対して8質量部添加し、十分に混合して銀ガラス導電性ペーストを作製した。このようにして作製した銀ガラス導電性ペーストを離型フィルム上にスクリーン印刷によって形成し、乾燥後、離型フィルムより剥がして、銀ガラス導電性ペーストのシートを得た。このシートの生密

度をアルキメデス法にて測定したところ、 $6.5\text{g/cm}^3$ であった。

[0252] 次に、前記銀ガラスペーストのシートを積層体13の外部電極15面に転写し、650°Cで30分焼き付けを行い、3次元網目構造をなす多孔質導電体からなる外部電極15を形成した。なお、この時の外部電極15の空隙率は、外部電極15の断面写真を画像解析装置を用いて測定したところ40%であった。

その後、外部電極15にリード線を接続し、正極及び負極の外部電極15にリード線を介して $3\text{kV/mm}$ の直流電界を15分間印加して分極処理を行い、図1に示すような積層型圧電素子を作製した。

[0253] 実施例9.

実施例9では、上記の製法に加えて、内部電極12および外部電極15の金属組成を制御して作製された本発明の積層型圧電アクチュエータにおいて、積層型圧電アクチュエータの連続駆動前後における素子変位量の変化率を測定した。

上記のようにして得られた積層型圧電アクチュエータに対して、170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に $45\mu\text{m}$ の変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で $0\sim+170\text{V}$ の交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1\times10^9$ 回まで連続駆動した試験を行った。

[0254] また、内部電極12と外部電極15の熱膨張係数は、SEMにより観察箇所の温度を計測しながら加熱して、温度と内部電極12と外部電極15の寸法を計測することで測定した。結果は表8に示すとおりである。

[0255] 表8

表8-1

No	内部電極構成金属			熱膨張係数 $\alpha_1$ ( $\times 10^{-6}/\text{deg}$ )
	A g (質量 %)	P d (質量 %)	A u (質量 %)	
*1	100	0		17.0
*2	100	0		17.0
3	99.99	0.01		17.0
4	99.9	0.1		17.0
5	99	1		16.9
6	98	2		16.9
7	95	5		16.7
8	90	10		16.5
9	85	15		16.2
10	80	20		16.0
11	70	30		15.4
12	95		5	16.9
*13	60	40		14.9
*14	70	30		15.4
*15	70	30		15.4

表8-2

No	外部電極構成金属			熱膨張係数 $\alpha_2$ ( $\times 10^{-6}/\text{deg}$ )
	A g (質量 %)	P d (質量 %)	A u (質量 %)	
*1	70	30	0	15.4
*2	100	0	0	17.0
3	100	0	0	17.0
4	100	0	0	17.0
5	100	0	0	17.0
6	100	0	0	17.0
7	100	0	0	17.0
8	100	0	0	17.0
9	100	0	0	17.0
10	100	0	0	17.0
11	100	0	0	17.0
12	100	0	0	17.0
*13	100	0	0	17.0
*14	70	30	0	15.4
*15	0	0	100	14.2

表8-3

N o ・	$\alpha_1 / \alpha_2$	構成割合 (質量%)	初期変位 量A ( $\mu\text{m}$ )	連続駆動後 最大変位量 B ( $\mu\text{m}$ )	変位量 変化率 (%)
1	1. 1	100	45. 0	破壊	—
2	1. 0	100	45. 0	破壊	—
3	0. 99997	100	45. 0	44. 7	0. 7
4	0. 9997	100	45. 0	44. 8	0. 4
5	0. 997	99	45. 0	44. 9	0. 2
6	0. 99	98	45. 0	45. 0	0. 0
7	0. 98	95	45. 0	45. 0	0. 0
8	0. 97	90	45. 0	44. 8	0. 4
9	0. 95	85	45. 0	44. 7	0. 7
1 0	0. 94	80	45. 0	44. 6	0. 9
1 1	0. 91	70	45. 0	44. 6	0. 9
1 2	0. 99	95	45. 0	45. 0	0. 0
1 3	0. 88	60	45. 0	44. 4	1. 3
1 4	1. 0	70	45. 0	44. 4	1. 3
1 5	1. 09	70	45. 0	破壊	—

[0256] 表8-3において、構成割合の欄には、外部電極主成分が内部電極を構成する割合(質量%)を示している。

初期変位量A( $\mu\text{m}$ )の欄には、連続駆動する前の初期状態における変位量A( $\mu\text{m}$ )を示す。

連続駆動後最大変位量B( $\mu\text{m}$ )の欄には、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動した後の最大変位量( $\mu\text{m}$ )を示す。

変位量変化率(%)の欄には、初期状態における変位量Aに対する連続駆動後の変位量Bの変化率( $| (A-B) / A \times 100 |$ )を示す。

破壊と記載されている部分は、内部電極と外部電極との間でスパークして破壊することを示す。

[0257] この表8から、比較例である試料番号1、2および15は、内部電極12を構成する金属元素の熱膨張係数を $\alpha_1$ 、外部電極15を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_2$ としたとき、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が1以上であったため、積層型圧電アクチュエータを連続駆動させると、内部電極12の熱膨張に加え、圧電磁器自体が寸法変化し、内

部電極12と外部電極15の接合部分にかかる負荷が大きくなり、内部電極12と外部電極15間でスパークして連続駆動中に断線が発生した。また、試料番号14では上記接合部分にかかる負荷により、積層型圧電アクチュエータの実効変位量が小さくなつた。

[0258] 一方、比較例である試料番号13は、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9より小さかつたため、内部電極12を構成する金属の熱膨張係数 $\alpha_1$ と外部電極15を構成する熱膨張係数 $\alpha_2$ との差が大きくなり、内部電極12と外部電極15との間で密着不良が生じて、積層型圧電素子の実効変位量が小さくなつた。

[0259] これらに対して、本発明の実施例である試料番号3～12では、内部電極12と外部電極15の熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満の範囲で形成した積層型圧電アクチュエータであったため、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後も、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効変位量を有し、また、熱暴走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0260] 実施例10.

実施例10として、上記の製法に加えて、内部電極12および外部電極15の金属組成を制御して作製された本発明の積層型圧電アクチュエータにおいて、中間層70の形成状態と外部電極15の主成分が内部電極を構成する割合と積層型圧電アクチュエータの連続駆動前後における素子変位量の変化率を測定した。

なお、外部電極15の金属組成にガラスフリットを加えたものをペーストとして印刷焼き付けることにより、外部電極15を形成した。

[0261] 上記のようにして得られた積層型圧電アクチュエータに対して、170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に $45 \mu m$ の変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータを室温で0～+170Vの交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動させた駆動試験を行つた。結果は表9に示すとおりである。

[0262] 表9

表9-1

No	内部電極構成金属			
	A g (質量%)	P d (質量%)	C u (質量%)	N i (質量%)
1	99.99	0.01	0	0
2	99.9	0.1	0	0
3	99	1	0	0
4	98	2	0	0
5	95	5	0	0
6	90	10	0	0
7	85	15	0	0
8	80	20	0	0
9	0	0	100	0
10	0	0	99.9	0.1
11	0	0	0	100
*12	0	0	100	0
*13	100	0	0	0

表9-2

No	外部電極構成金属			
	A g (質量%)	P d (質量%)	C u (質量%)	N i (質量%)
1	100	0	0	0
2	100	0	0	0
3	100	0	0	0
4	100	0	0	0
5	100	0	0	0
6	100	0	0	0
7	100	0	0	0
8	100	0	0	0
9	10	0	90	0
10	0	0	100	0
11	0	0	10	90
12	100	0	0	0
13	0	0	100	0

表9-3

N o	中間層がある=○ 無い=×	構成割合 (質量%)	初期変位量A(μm)	連続駆動後最大変位量B(μm)	変位量変化率(%)
1	○	100	45.0	44.7	0.7
2	○	100	45.0	44.8	0.4
3	○	99	45.0	44.9	0.2
4	○	98	45.0	45.0	0.0
5	○	95	45.0	45.0	0.0
6	○	90	45.0	44.8	0.4
7	○	85	45.0	44.7	0.7
8	○	80	45.0	44.6	0.9
9	○	100	45.0	44.9	0.2
10	○	99.9	45.0	45.0	0.0
11	○	100	45.0	44.8	0.4
12	×	0	45.0	破壊	-
13	×	0	45.0	破壊	-

[0263] 表9-3において、中間層の欄には、中間層がある場合は(○)とし、無い場合は(×)と表示した。

構成割合の欄には、外部電極主成分が内部電極を構成する割合(質量%)を示している。

初期変位量A(μm)の欄には、連続駆動する前の初期状態における変位量A(μm)を示す。

連続駆動後最大変位量B(μm)の欄には、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動した後の最大変位量(μm)を示す。

変位量変化率(%)の欄には、初期状態における変位量Aに対する連続駆動後の変位量Bの変化率( $| (A-B) / A \times 100 |$ )を示す。

破壊と記載されている部分は、内部電極と外部電極との間でスパークして破壊したことを示す。

[0264] この表9から、比較例である試料番号12および13は、中間層を形成しなかつたた

め、また、内部電極12を構成する金属組成と外部電極15を構成する金属組成が類似していなかったので、内部電極12と外部電極15の接合部分にかかる負荷が大きくなり、内部電極と外部電極間でスパークして連続駆動中に断線が発生した。

[0265] これらに対して、本発明の実施例である試料番号1～11は、中間層を形成したため、また、内部電極12を構成する金属組成と外部電極15を構成する金属組成が類似していたので、 $1 \times 10^9$ 回連続駆動させた後でも、素子変位量が著しく低下することなく、積層型圧電アクチュエータとして必要とする実効的な変位量を有し、また、熱暴走や誤作動が生じない優れた耐久性を有した積層型圧電アクチュエータを作製できた。

[0266] 実施例11.

実施例11として、上記の製法において、様々な電極材料組成で形成した内部電極12を有する積層型圧電アクチュエータにおいて、積層型圧電アクチュエータの連続駆動中における素子変位量の最大変化率を測定し、内部電極12の電極材料組成と積層型圧電アクチュエータの連続駆動による劣化の度合との関連について検証した。

[0267] ここで、劣化の度合とは、積層型圧電アクチュエータを任意の回数で駆動中の最大素子変位量(連続駆動中の最大素子変位量)を測定し、さらに、上記の積層型圧電アクチュエータを所定の回数で駆動させた後の素子変位量(連続駆動後の素子変位量)を測定して、該連続駆動後の素子変位量が前記連続駆動中の最大素子変位量に対して変化した割合で示している。これにより、任意の回数で駆動中の積層型圧電アクチュエータを所定回数で連続駆動させることによって引き起こされる劣化の様子を確認することができる。

[0268] 上記のようにして得られた積層型圧電アクチュエータに対して、170Vの直流電圧を印加したところ、すべての積層型圧電アクチュエータにおいて、積層方向に $45 \mu m$ の変位量が得られた。さらに、この積層型圧電アクチュエータに室温で0～+170Vの交流電圧を150Hzの周波数で印加して、 $1 \times 10^9$ 回まで連続駆動させた駆動試験を行った。結果は表9に示すとおりである。

[0269] 表10

No	Pd (質量%)	Ag (質量%)	Cu (質量%)	Ni (質量%)	変位量変化率 (%)	劣化の度合 (%)
1	0	100	0	0	破損	—
2	0.001	99.999	0	0	0.7	0.22
3	0.01	99.99	0	0	0.7	0.22
4	0.1	99.9	0	0	0.4	0.22
5	0.5	99.5	0	0	0.2	0.00
6	1	99	0	0	0.2	0.00
7	2	98	0	0	0	0.00
8	4	95	1	0	0	0.00
9	5	95	0	0	0	0.00
10	8	92	0	0	0	0.00
11	9	91	0	0	0.2	0.00
12	9.5	90.5	0	0	0.2	0.00
13	10	90	0	0	0.4	0.22
14	15	85	0	0	0.7	0.22
15	0	0	100	0	0.2	0.00
16	0	0	99.9	0.1	0	0.00
17	0	0	0	100	0.4	0.22
18	20	80	0	0	0.9	0.45
19	30	70	0	0	0.9	0.45

[0270] 表10において、Pd(質量%)、Ag(質量%)、Cu(質量%)及びNi(質量%)の欄には、内部電極金属中の各金属の割合を示している。

変位量変化率(%)の欄には、初期状態に対する連続駆動後の変位量の変化率を示している。

破壊と記載されている部分は、マイグレーションにより破壊したことを示す。

[0271] この表10から、試料番号1は内部電極12を銀100%で形成したため、シルバー・マイグレーションが起こり、内部電極12と外部電極15の接合部分にかかる負荷が大きくなり、内部電極12と外部電極15間でスパークして連続駆動中に断線が発生した

ため、連続駆動が困難となった。

また、試料番号18、19は内部電極12中の金属組成物において、8～10族金属の含有量が15質量%を超えており、また、11族金属の含有量が85質量%未満であったため、連続駆動によって劣化が増大して、積層型圧電アクチュエータの耐久性が低下した。

- [0272] これらに対して、試料番号2～16では内部電極12中の金属組成物が8～10族金属の含有量をM1(質量%)、11族金属の含有量をM2(質量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足する金属組成物を主成分としたため、内部電極12の比抵抗を小さくでき、連続駆動させても内部電極12で発生する発熱を抑制できたので、素子変位量が安定した積層型アクチュエータを作製できた。
- [0273] なお、本発明は、上記実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内で種々の変更を行うことは何等差し支えない。

## 請求の範囲

- [1] 少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、  
前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、  
前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、  
前記圧電体と前記内部電極との間の接合強度を前記圧電体の曲げ強度より弱くした積層型圧電素子。
- [2] 前記圧電体と前記内部電極との間の接合強度が70MPa以下であることを特徴とする請求項1に記載の積層型圧電素子。
- [3] 前記第1の外部電極と内部電極との間の接合強度及び前記第2の外部電極と内部電極との間の接合強度が、前記圧電体と前記内部電極との接合強度よりも大きいことを特徴とする請求項1または2に記載の積層型圧電素子。
- [4] 少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、  
前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、  
前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、  
前記内部電極は空隙を含み、前記内部電極の断面において前記空隙の占める面積の割合が5ー70%であることを特徴とする積層型圧電素子。
- [5] 少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、  
前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、  
前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、

前記積層体の積層方向に前記内部電極を貫通する空隙を設けたことを特徴とする積層型圧電素子。

- [6] 全ての前記内部電極に、前記内部電極を貫通する空隙を設けたことを特徴とする請求項5に記載の積層型圧電素子。
- [7] 前記内部電極と前記圧電体との界面において、電極部分と前記圧電体の境界と、前記空隙と前記電極部分の境界とのなす角度が、60度以上であることを特徴とする請求項4乃至6のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [8] 前記内部電極にBNを主成分とする無機組成物を添加したことを特徴とする請求項4乃至7のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [9] 少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、
  - 前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、
    - 前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、
      - 前記第1の内部電極と前記第2の内部電極が対向する対向部分の形状は、非線対称形状であることを特徴とする積層型圧電素子。
  - [10] 前記対向部分の形状は、点対称形状であることを特徴とする請求項9に記載の積層型圧電素子。
  - [11] 前記第1の内部電極は、その端部の一部が前記積層体の側面より内側に位置することにより、その側面に形成された第2の外部電極と絶縁されており、前記第2の内部電極は、その端部の一部が前記積層体の側面より内側に位置することにより、その側面に形成された第1の外部電極と絶縁されたことを特徴とする請求項9または10に記載の積層型圧電素子。
  - [12] 前記積層体の内部において、前記第1の内部電極と前記第2の外部電極の距離及び前記第2の内部電極と前記第1の外部電極の距離が、0.1～5mmの範囲に設定されたことを特徴とする請求項9乃至11のいずれかに記載の積層型圧電素子。
  - [13] 前記第1の内部電極の一部が前記第2の外部電極が形成されている前記積層体

の側面に露出されており、その前記第1の内部電極の露出部と前記第2の外部電極の間の前記積層体の表面における最短距離及び前記第2の内部電極の一部が前記第1の外部電極が形成されている前記積層体の側面に露出されており、その前記第2の内部電極の露出部と前記第1の外部電極の間の前記積層体の表面における最短距離がそれぞれ、0.1～5mmの範囲に設定されたことを特徴とする請求項9乃至12のいずれかに記載の積層型圧電素子。

[14] 少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、

前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、

前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、

前記第1の内部電極の前記第2の外部電極に対向する対向端部は円弧形状であり、前記第2の内部電極の前記第1の外部電極に対向する対向端部は円弧形状であることを特徴とする積層型圧電素子。

[15] 前記円弧形状の中心は、前記内部電極内にある請求項14記載の積層型圧電素子。

[16] 前記円弧形状の中心は、前記内部電極の外にある請求項14記載の積層型圧電素子。

[17] 前記第1の内部電極と前記第2の内部電極が重なる対向部分のかどは、それぞれ円弧形状であることを特徴とする請求項14～16のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。

[18] 前記円弧形状の曲率半径Rが0.5～10mmの範囲に設定されたことを特徴とする請求項14～17のうちのいずれか1つに記載の積層型圧電素子。

[19] 前記内部電極を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_1$ 、前記外部電極を構成する金属の熱膨張係数を $\alpha_2$ としたとき、熱膨張係数の比( $\alpha_1 / \alpha_2$ )が0.9以上1未満であることを特徴とする請求項1乃至18のいずれかに記載の積層型圧電素子。

[20] 前記内部電極と前記外部電極の接合部に、前記内部電極及び前記外部電極とは

組成の異なる中間層を設けたことを特徴とする請求項1乃至19のいずれかに記載の積層型圧電素子。

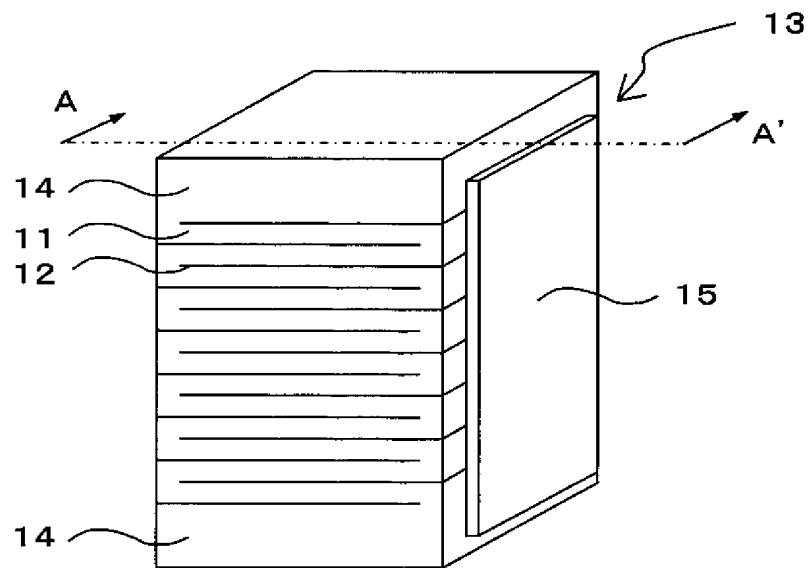
- [21] 前記中間層が前記内部電極を構成する金属組成物と前記外部電極を構成する金属組成物からなることを特徴とする請求項20記載の積層型圧電素子。
- [22] 前記中間層の熱膨張係数を $\alpha_3$ としたとき、 $\alpha_1 < \alpha_3 < \alpha_2$ であることを特徴とする請求項20または21に記載の積層型圧電素子。
- [23] 前記中間層の組成が前記内部電極中の金属組成から外部電極中の金属組成へと傾斜的に変化していることを特徴とする請求項18乃至22のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [24] 前記内部電極を構成する金属組成物が、前記外部電極を構成する金属組成物の主成分を80質量%以上100質量%未満含んでいることを特徴とする請求項19乃至23のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [25] 前記内部電極が、前記積層体の全ての側面で露出していることを特徴とする請求項1乃至24のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [26] 前記内部電極中の金属組成物が8～10族金属および／または11族金属を主成分とすることを特徴とする請求項1乃至25のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [27] 前記内部電極中の8～10族金属の含有量をM1(質量%)、11族金属の含有量をM2(質量%)としたとき、 $0 < M1 \leq 15$ 、 $85 \leq M2 < 100$ 、 $M1 + M2 = 100$ を満足することを特徴とする請求項26に記載の積層型圧電素子。
- [28] 前記8～10族金属がNi、Pt、Pd、Rh、Ir、Ru、Osのうち少なくとも1種以上であり、11族金属がCu、Ag、Auのうち少なくとも1種以上であることを特徴とする請求項26又は27に記載の積層型圧電素子。
- [29] 前記8～10族金属がPt、Pdのうち少なくとも1種以上であり、11族金属がAg、Auのうち少なくとも1種以上であることを特徴とする請求項26乃至28のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [30] 前記8～10族金属がNiであることを特徴とする請求項26乃至28のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [31] 前記11族金属がCuであることを特徴とする請求項26乃至28のいずれかに記載の

積層型圧電素子。

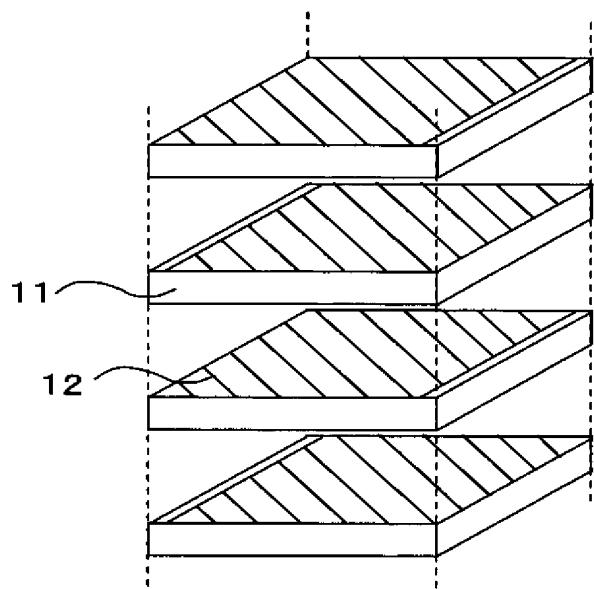
- [32] 前記内部電極中に金属組成物とともに、該金属組成物とは異なる無機組成物を添加したことを特徴とする請求項1乃至31のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [33] 前記無機組成物が $PbZrO_3-PbTiO_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることを特徴とする請求項32に記載の積層型圧電素子。
- [34] 前記圧電体がペロブスカイト型酸化物を主成分とすることを特徴とする請求項1乃至33のいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [35] 前記圧電体が $PbZrO_3-PbTiO_3$ からなるペロブスカイト型酸化物を主成分とすることを特徴とする請求項34に記載の積層型圧電素子。
- [36] 前記積層体の一側面において、前記第1の内部電極の端部が露出しつつ前記第2の内部電極と前記第1の外部電極間には溝が形成されており、  
前記積層体の他の側面において、前記第2の内部電極の端部が露出しつつ前記第1の内部電極と前記第1の外部電極間には溝が形成されており、  
前記各溝に前記圧電体よりもヤング率の低い絶縁体が充填されていることを特徴とする請求項1、4、5、9、14のうちいずれかに記載の積層型圧電素子。
- [37] 請求項4または5に記載された積層型圧電素子の製造方法において、前記内部電極を2種以上の混合材料で構成し、該混合材料を最も低い融点以上で、且つ他の材料の融点以下の温度で仮焼した後に、本焼成する工程を含むことを特徴とする積層型圧電素子の製造方法。

1/15

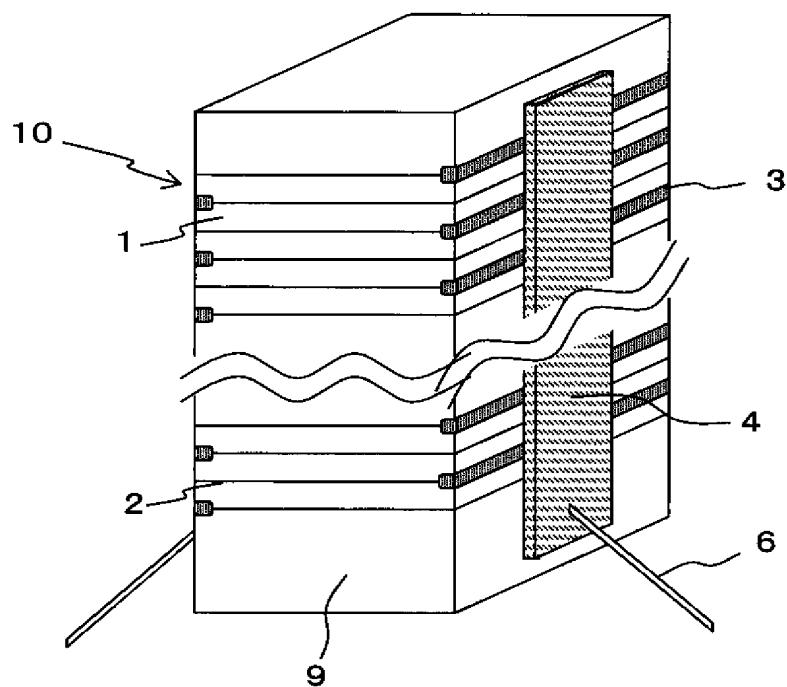
[図1A]



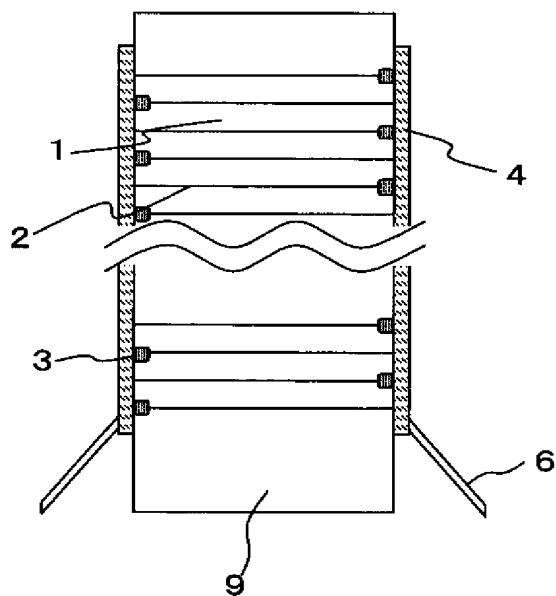
[図1B]



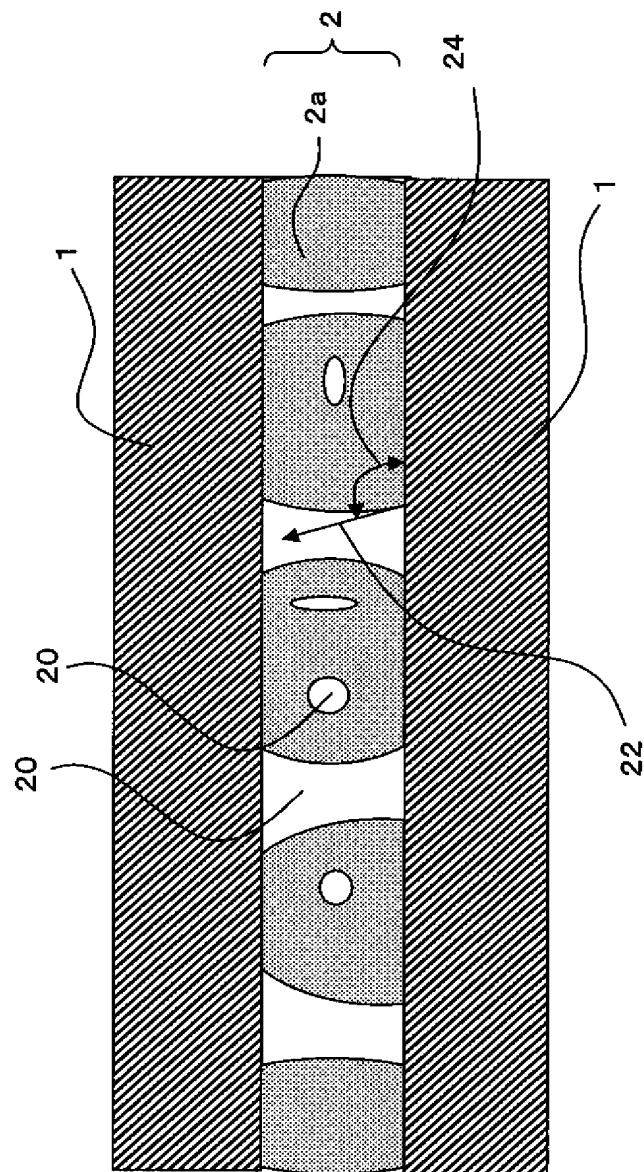
[図2A]



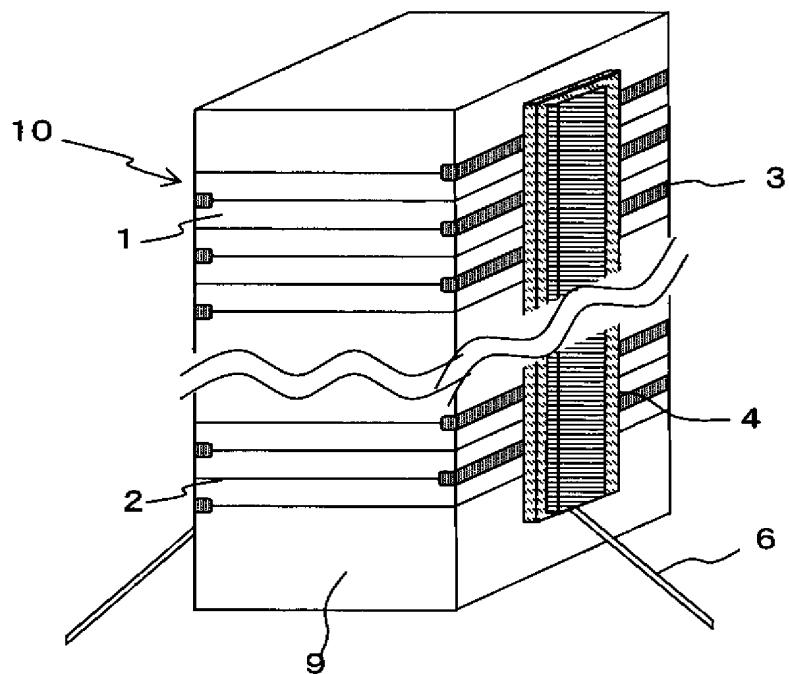
[図2B]



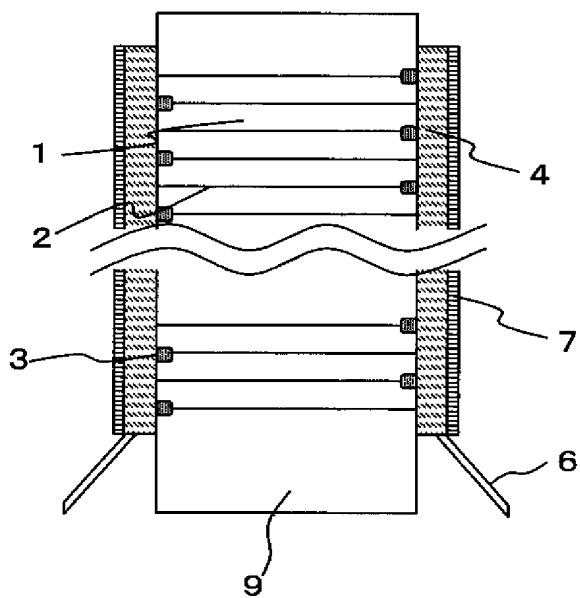
[図3]



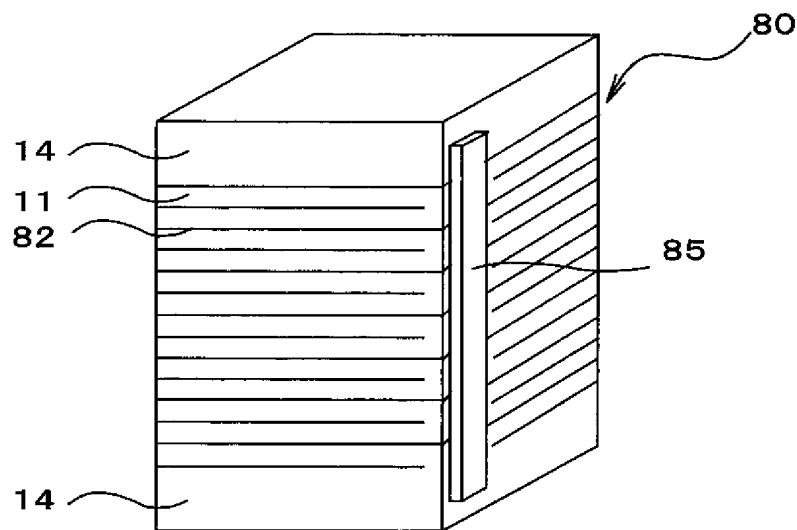
[図4A]



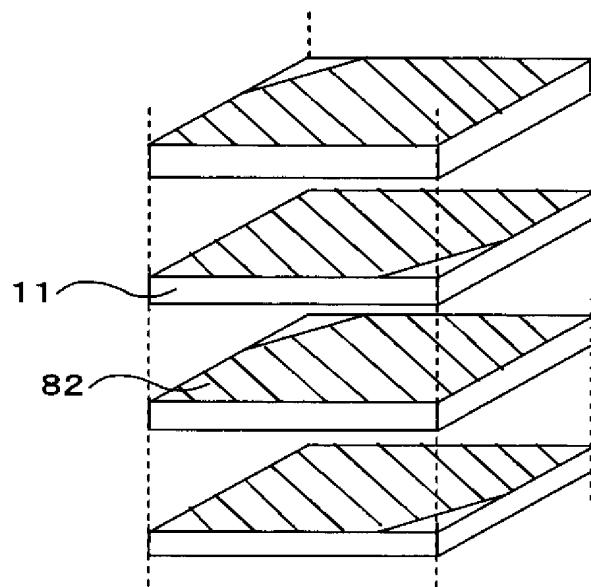
[図4B]



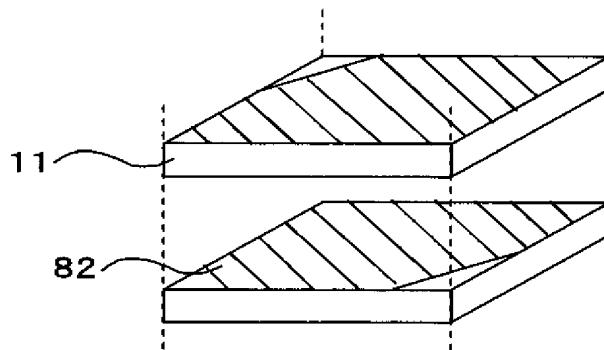
[図5A]



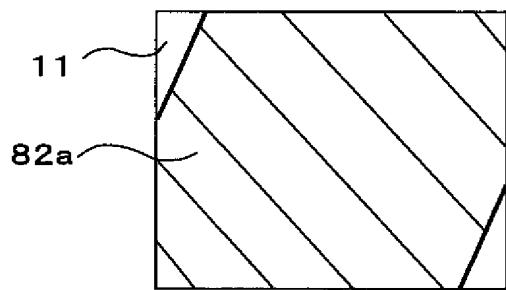
[図5B]



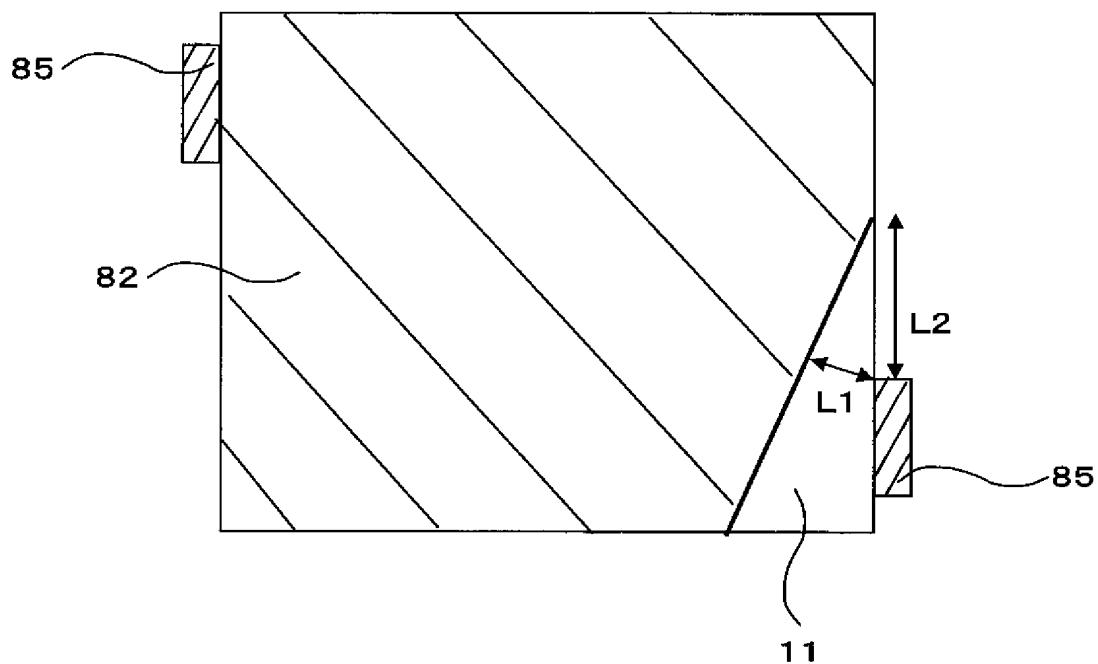
[図6A]



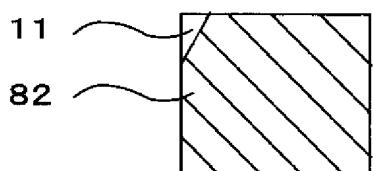
[図6B]



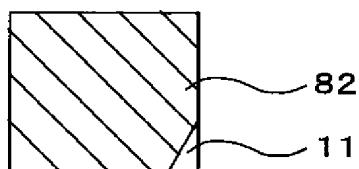
[図7]



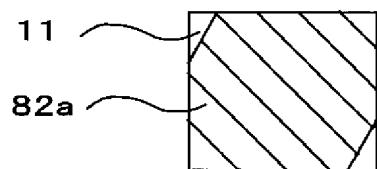
[図8A]



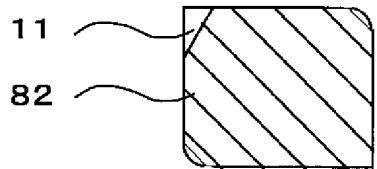
[図8B]



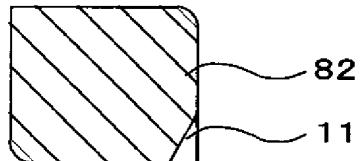
[図8C]



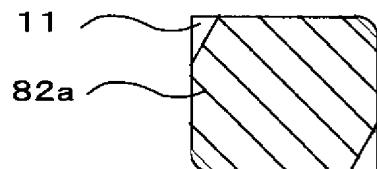
[図9A]



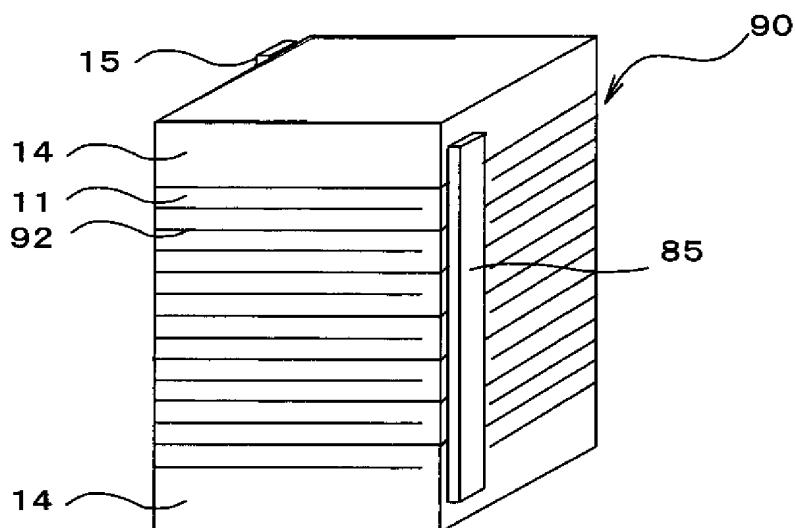
[図9B]



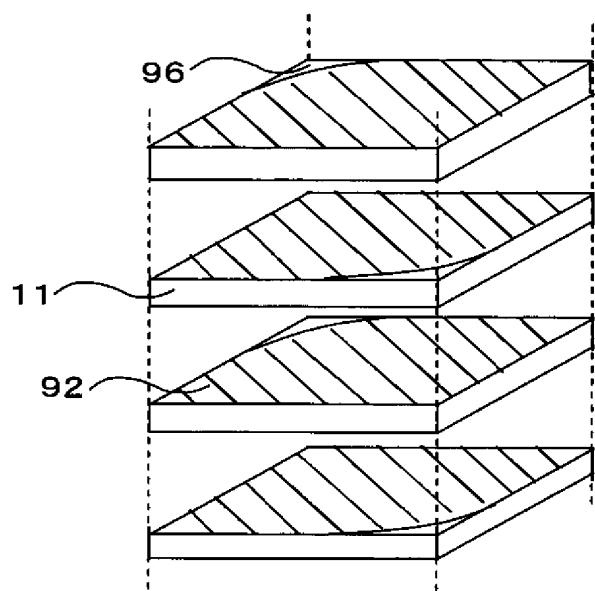
[図9C]



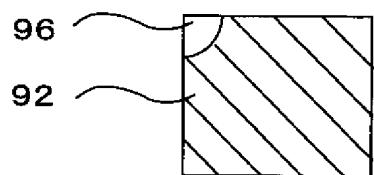
[図10A]



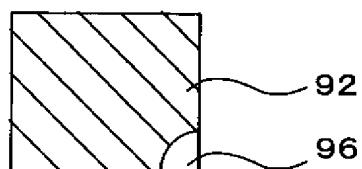
[図10B]



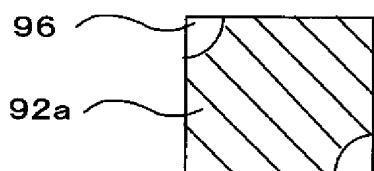
[図10C]



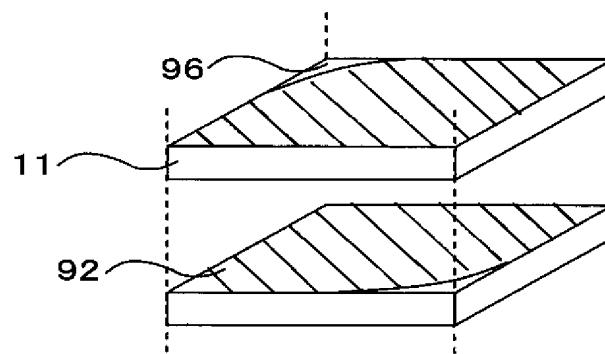
[図10D]



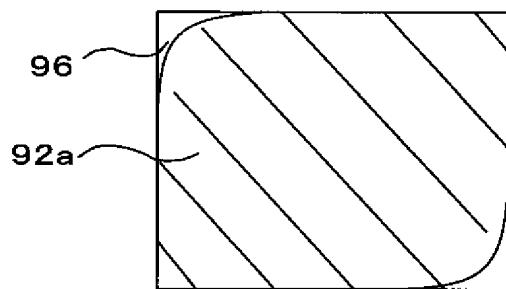
[図10E]



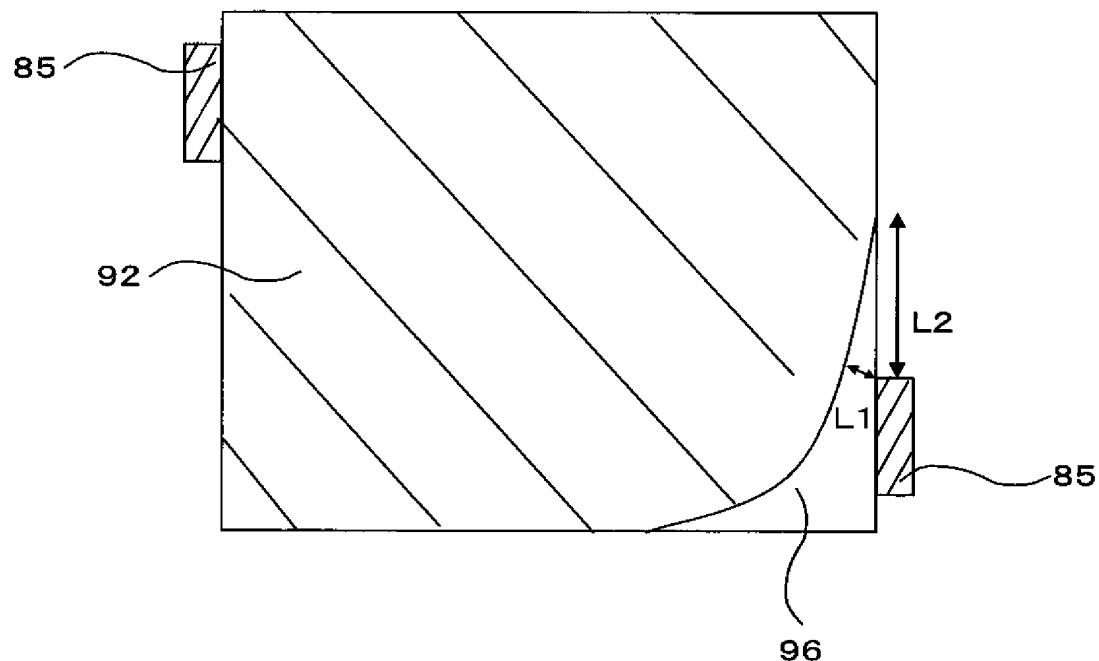
[図11A]



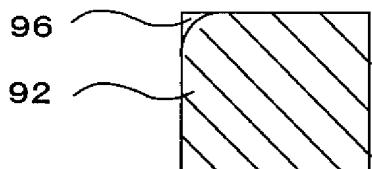
[図11B]



[図12]



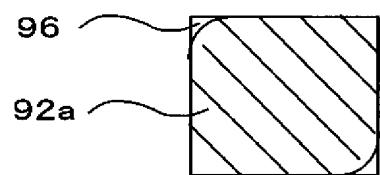
[図13A]



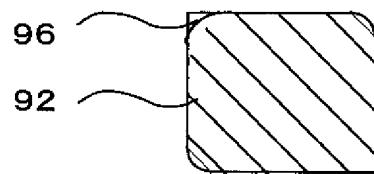
[図13B]



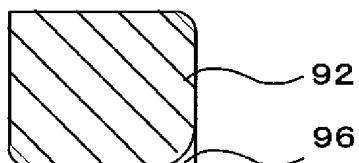
[図13C]



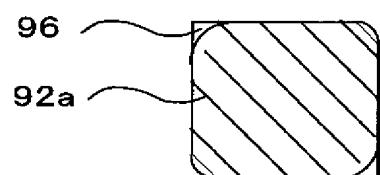
[図14A]



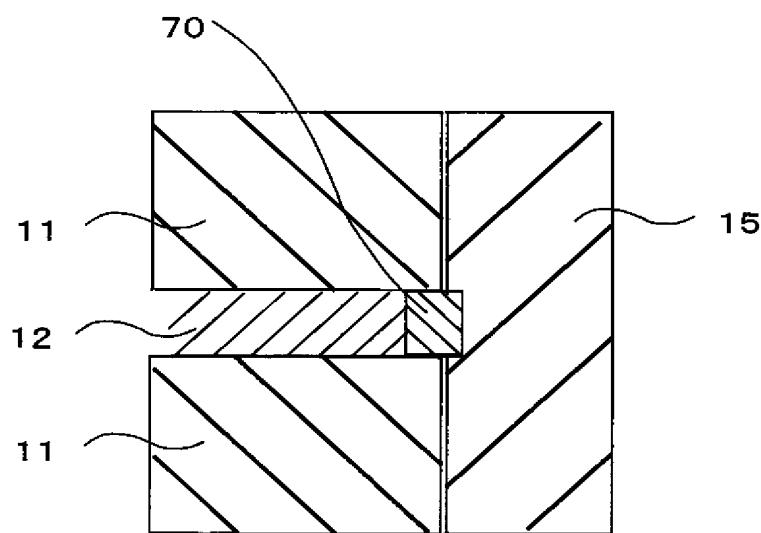
[図14B]



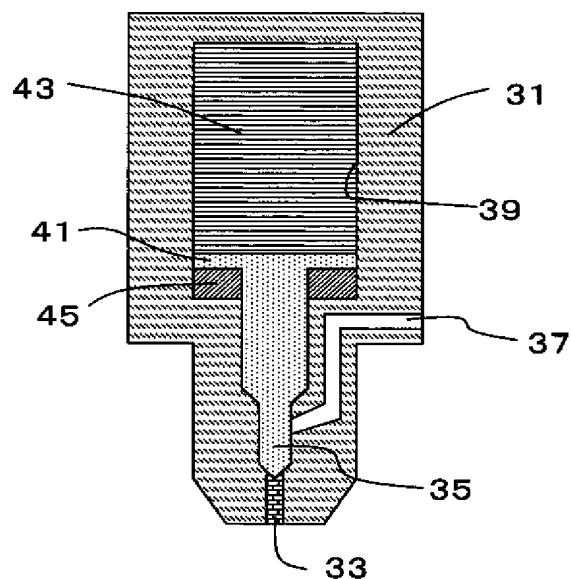
[図14C]



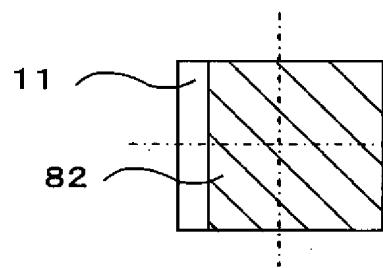
[図15]



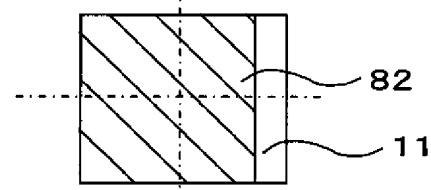
[図16]



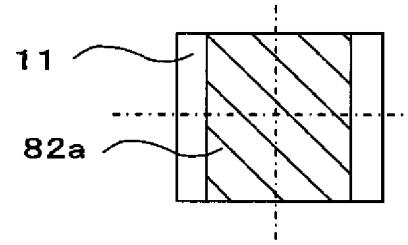
[図17A]



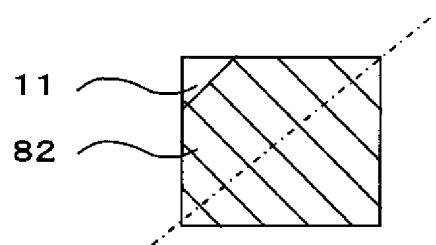
[図17B]



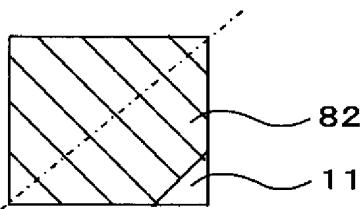
[図17C]



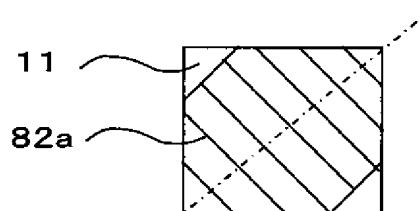
[図18A]



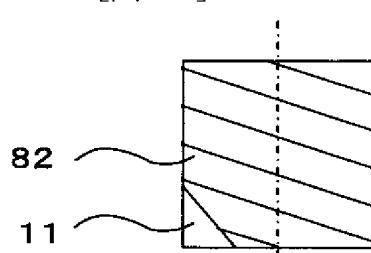
[図18B]



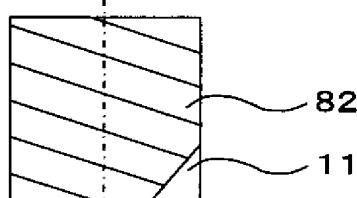
[図18C]



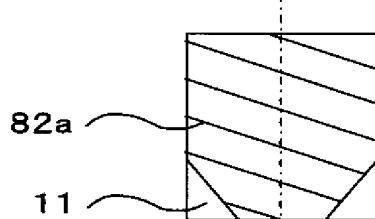
[図19A]



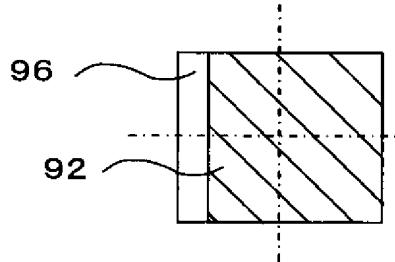
[図19B]



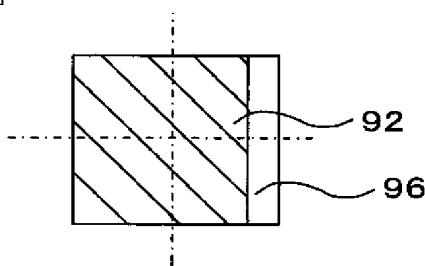
[図19C]



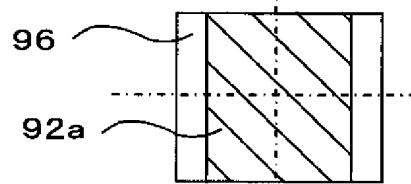
[図20A]



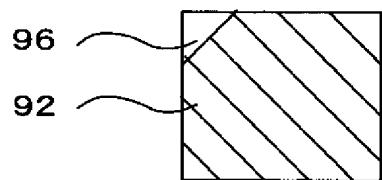
[図20B]



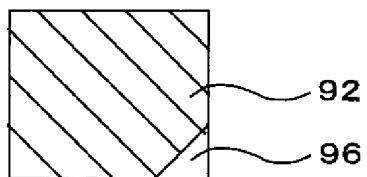
[図20C]



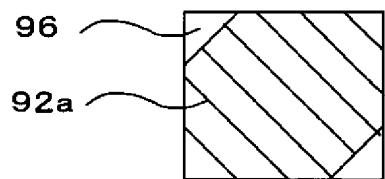
[図21A]



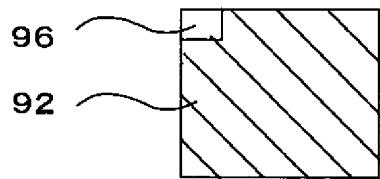
[図21B]



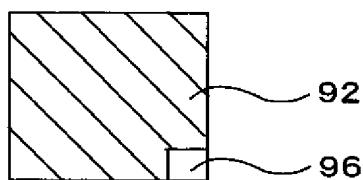
[図21C]



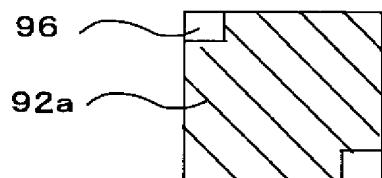
[図22A]



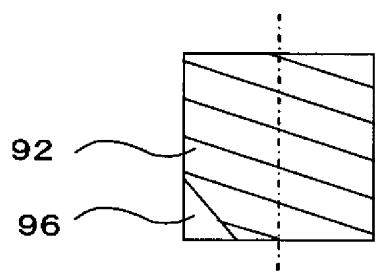
[図22B]



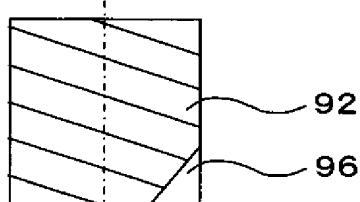
[図22C]



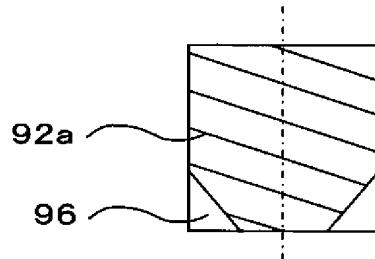
[図23A]



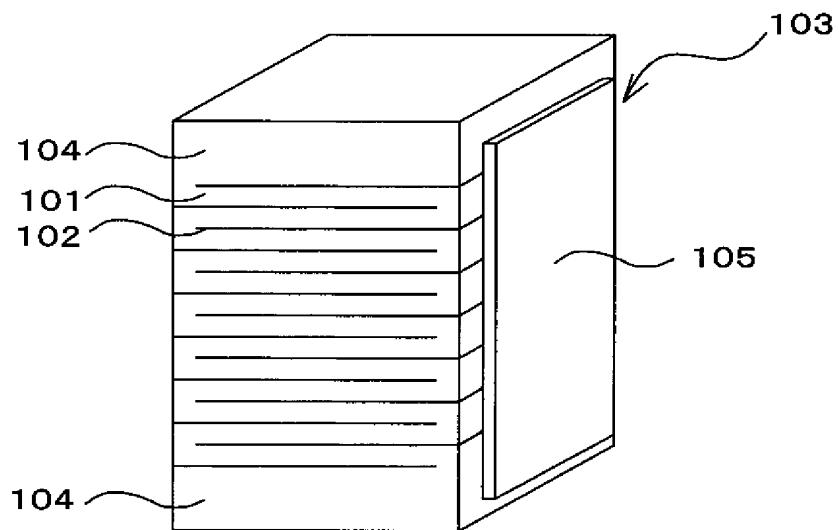
[図23B]



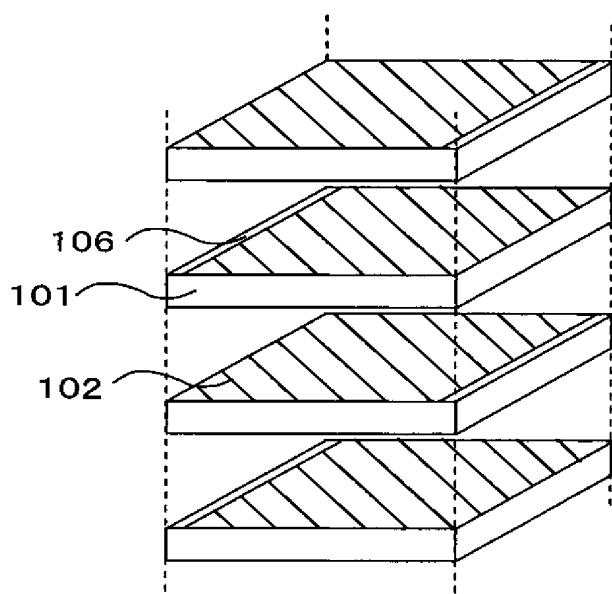
[図23C]



[図24A]



[図24B]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/004097

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01L41/083, F02M51/00, 51/06, H01L41/187, 41/22, H02N2/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01L41/083, F02M51/00, 51/06, H01L41/187, 41/22, H02N2/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2003-318458 A (Kyocera Corp.), 07 November, 2003 (07.11.03), Par. Nos. [0044] to [0053] (Family: none)	1-3

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&"	document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
03 June, 2005 (03.06.05)Date of mailing of the international search report  
21 June, 2005 (21.06.05)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2005/004097

**Box No. II      Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III      Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

There must exist a special technical feature so linking a group of inventions of claims as to form a single general inventive concept in order that the group of inventions may satisfy the requirement of unity of invention.

The group of invention of claims 1-37 are linked only by the technical feature of a multilayer piezoelectric body "comprising:

a multilayer body formed by alternating at least one piezoelectric body and inner electrodes composed of first and second inner electrodes,

a first external electrode formed on a first side of the multilayer body and connected to the first inner electrode, and

a second external electrode (Continued to extra sheet)

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1-3

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/004097

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

formed on a second side of the multilayer body and connected to the second inner electrode".

However, this technical feature cannot be a special technical feature since it is disclosed in prior art document JP 2003-318458 A (Kyocera Corp.), 7 November, 2003 (07.11.03), Par. Nos. [0044]-[0053].

Therefore, there is no special technical feature so linking the group of inventions of claims 1-37 as to form a single general inventive concept.

Consequently, it is obvious that the group of inventions of claims 1-37 do not satisfy the requirement of unity of invention.

Considering the specific forms stated in the independent claims, the claims of the international application define five groups of inventions: the inventions of claims 1-3, 19-36; the inventions of claims 4, 7, 8, 37; the inventions of claims 5, 6; the inventions of claims 9-13; and the inventions of claims 14-18.

Claims 1-3, 19-36

The group of invention of claims 1-3, 19-36 are linked only by the technical feature of "a multilayer piezoelectric body comprising:

a multilayer body formed by alternating at least one piezoelectric element and inner electrodes composed of first and second inner electrodes,

a first external electrode formed on a first side of the multilayer body and connected to the first inner electrode,

and a second external electrode formed on a second side of the multilayer body and connected to the second inner electrode,

wherein the strength of adhesion between the piezoelectric body and the inner electrodes is less than the flexural strength of the piezoelectric body".

However, since this technical feature is disclosed in the prior art document mentioned above,

considering the specific forms stated in the claims, the claims 1-3, 19-36 of the international application define nine groups of inventions: the inventions of claims 1-3; the inventions of claims 19, 24; the inventions 20-23; the invention of claim 25; the inventions 26-31; the invention of claim 32; the invention of claim 33; the inventions of claims 34, 35; and the invention of claim 36.

Further, the unity concerning claims 26-31 will be examined.

The group of inventions claim 26-31 are linked only by the technical feature that "the metal composition in the inner electrodes comprises as a main component a group 8-10 metal and/or a group 11 metal".

However, since this technical feature is disclosed in the above-mentioned prior art document, considering the specific forms of the inventions of claims, claims 26-31, the claims of the international application define five inventions: the invention of claims 26, 27; the invention of claim 28; the invention of claim 29; the invention of claim 30; and the invention of claim 31.

Therefore claims 1-3, 19-36 define 13 inventions.

Consequently, this international application contains 17 inventions not satisfying the requirement of unity of inventions.

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl.<sup>7</sup> H01L41/083, F02M51/00, 51/06, H01L41/187, 41/22, H02N2/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl.<sup>7</sup> H01L41/083, F02M51/00, 51/06, H01L41/187, 41/22, H02N2/00

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

## 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2003-318458 A (京セラ株式会社) 2003.11.07, 【0044】-【0053】 (ファミリーなし)	1-3

〔 C 棚の続きにも文献が列挙されている。

〔 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す  
もの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日  
以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行  
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用す  
る文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願目前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって  
出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論  
の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明  
の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以  
上の文献との、当業者にとって自明である組合せに  
よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

03.06.2005

## 国際調査報告の発送日

21.6.2005

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官（権限のある職員）

國島 明弘

4M

3238

電話番号 03-3581-1101 内線 3462

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3.  請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲に記載されている一群の発明が单一性の要件を満たすには、その一群の発明を單一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であり、

請求の範囲1—3に記載されている一群の発明は、  
(特別ページに続く)

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求の範囲1—3

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

## (第3欄の続き)

「少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、

前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、

前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有」する積層型圧電素子であるという事項でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は先行技術文献 J P 2003-318458 A (京セラ株式会社), 2003. 11. 07, 【0044】-【0053】に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲1-37に記載されている一群の発明の間には、单一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存しないこととなる。

そのため、請求の範囲1-37に記載されている一群の発明が発明の单一性の要件を満たしていないことは明らかである。

そして、独立請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲には、請求の範囲1-3, 19-36と、請求の範囲4, 7, 8, 37と、請求の範囲5, 6と、請求の範囲9-13と、請求の範囲14-18とに区分される5群の発明が記載されている。

## ・請求の範囲1-3, 19-36

請求の範囲1-3, 19-36に記載されている一群の発明は、「少なくとも1つの圧電体と第1及び第2の内部電極からなる複数の内部電極とが交互に積層されてなる積層体と、

前記積層体の第1の側面に形成されて前記第1の内部電極に接続された第1の外部電極と、前記積層体の第2の側面に形成されて前記第2の内部電極に接続された第2の外部電極とを有し、

前記圧電体と前記内部電極との間の接合強度を前記圧電体の曲げ強度より弱くした積層型圧電素子」であるという事項でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は上記先行技術文献に記載されているため、

請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲1-3, 19-36には、

請求の範囲1-3と、請求の範囲19, 24と、

請求の範囲20-23と、請求の範囲25と、請求の範囲26-31と、請求の範囲32と、請求の範囲33と、請求の範囲34, 35と、請求の範囲36と、  
とに区分される9群の発明が記載されている。

(次のページに続く)

(前のページの続き)

さらに、請求の範囲26-31について单一性の検討を行う。

請求の範囲26-31に記載されている一群の発明は、「内部電極中の金属組成物が8-10族金属および／または11族金属を主成分とする」事項でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は上記先行技術文献に記載されているため、請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲26-31には、請求の範囲26, 27と、請求の範囲28と、請求の範囲29と、請求の範囲30と、請求の範囲31とに区分される5個の発明が記載されている。

よって、請求の範囲1-3, 19-36には、13個の発明が記載されていると認める。

したがって、この国際出願は、発明の单一性の要件を満たさない17個の発明を含むものである。